



# Mesures de masses atomiques de noyaux exotiques

Georges Audi

## ► To cite this version:

Georges Audi. Mesures de masses atomiques de noyaux exotiques. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université Paris Sud - Paris XI, 1981. Français. NNT : . tel-00002380

**HAL Id: tel-00002380**

**<https://theses.hal.science/tel-00002380>**

Submitted on 11 Feb 2003

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

ORSAY  
n° d'ordre : 2486

UNIVERSITE DE PARIS-SUD  
CENTRE D'ORSAY

# THESE

présentée

Pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR D'ETAT  
SPECIALITE SCIENCES PHYSIQUES

par

GEORGES AUDI

MESURES DE MASSES ATOMIQUES DE  
NOYAUX EXOTIQUES

Soutenue le 17 septembre 1981, devant la Commission d'Examen

M. H.SERGOLLE	Président
M. A.H.WAPSTRA	} Examineurs
M. X.CAMPI	
M. M.GUSAKOW	
M. R.KLAPISCH	
Mme M.EPHERRE	





A Messieurs Arnould et Gazal, professeurs  
de mathématique et de physique au  
Lycée Jean-Baptiste Say,  
Monsieur Guinier, professeur de physi-  
que au Lycée Janson-de-Sailly  
et Monsieur Boutigny, professeur de  
physique à l'Ecole Normale Supé-  
rieure de Saint-Cloud  
qui m'ont guidé sur le chemin et auxquels  
je voudrais dire, ici, à l'étape, mon  
respect et ma profonde gratitude.



## R E M E R C I E M E N T S

M. Robert KLAPISCH m'a accueilli au Laboratoire René Bernas du Centre de Spectrométrie Nucléaire et de Spectrométrie de Masses. C'est lui qui a suggéré et impulsé cette ligne de recherche et je lui en suis infiniment reconnaissant.

Ce travail a été mené sous la direction de Mme Catherine THIBAUT qui, avec compétence et disponibilité a toujours su répondre à mon attente et m'a fait partager son expérience. Ces recherches prolongent les siennes, et sans elle, elles n'auraient pas été. Je lui suis également redevable de ses excellents conseils concernant la rédaction de ce mémoire.

Je remercie Mme Marcelle EPHERRE pour l'étroite collaboration que nous avons eue et pour son aide précieuse tout au long de ces recherches. Auprès d'elle, j'ai acquis, grâce à sa grande expérience, des méthodes de travail et je lui dois de bonnes suggestions qui ont amélioré ce mémoire.

La méthode d'exploitation des résultats a été notablement perfectionnée grâce aux conseils et suggestions de M. A.H. WAPSTRA à qui j'exprime ici toute ma reconnaissance.

Des calculs Hartree-Fock ont pu être réalisés grâce à la collaboration que j'ai eue avec M. Xavier CAMPI, je l'en remercie vivement.

Je remercie également M. Henri SERGOLLE d'avoir accepté de présider le jury de cette thèse, ainsi que M. M. GUSAKOW qui a bien voulu s'y joindre.

Les discussions que j'ai eues avec MM. Marcel BEINER, Roger FOUCHER, Itzhak KELSON, Dominique VAUTHERIN et Nissan ZELDES m'ont apporté de nombreux éclaircissements dans la compréhension du comportement du noyau.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude à MM. Gerhardt HUBER, Hermann WOLLNIK et François TOUCHARD pour leur aide dans la préparation et le déroulement des expériences, ainsi qu'aux membres de la "collaboration ISOLDE" et tout particulièrement à MM. Claude CARRAZ et H.L. RAVN pour leur assistances au cours de ces expériences.

Ce travail n'aurait pu être réalisé sans l'aide efficace de notre équipe technique, à qui je voudrais témoigner toute ma reconnaissance : MM. Roger FERGEAU, Michel JACOTIN, Jean-François KEPINSKI, Jacques BIDERMAN et Mme Geneviève LE SCORNET. Que MM. Denis BARBET et Michel CAPEL trouvent ici mes remerciements pour leur aide et leurs réalisations.

Je tiens à associer à ces remerciements l'équipe du Centre de Calcul de l'IPN ainsi que M. Clyde ZAIDINS pour leur aide efficace dans les divers programmes mis au point ou utilisés dans cette thèse.

Que M. Claude THIBAUT trouve ici l'expression de ma gratitude pour le soin avec lequel il a réalisé la reproduction des figures, ainsi que Melle Monique BUTIN pour sa contribution à la frappe de ce mémoire.

Que Véronique et Sylvain, mes enfants, me pardonnent les moments dont la rédaction de cette thèse les a privés. L'aide de Ghislaine, mon épouse, a été décisive, notamment par la réalisation des dessins de ce mémoire.

o o  
o

# TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION .....	1
CHAPITRE A - DISPOSITIF EXPERIMENTAL .....	5
I - PRODUCTION DES NOYAUX EXOTIQUES .....	9
II - SELECTIVITE .....	10
1) Principe.....	10
2) Les Alcalins.....	11
3) Les Autres Eléments.....	12
III- OPTIQUE SOURCE .....	15
1) Double Ionisation.....	15
2) Géométrie de l'Optique Source.....	16
IV - SPECTROMETRE DE MASSE .....	21
1) Géométrie : Mattauch-Herzog.....	21
2) Trajectoire Centrale des Ions.....	21
3) Etude du Faisceau.....	23
4) Focalisation en Energie.....	24
5) Résolution et Transmission.....	27
6) Stabilités.....	34
V - DETECTION .....	35
1) Multiplicateur d'Electrons.....	35
2) Multiplicateur à Dynode Mobile.....	37
3) Galette de Microcanaux.....	39

CHAPITRE B - METHODE DE MESURE .....	41
I - CARACTERISTIQUES PRINCIPALES DE LA MESURE .....	41
1) Mesures Relatives et Mesures Absolues .....	41
2) Relation à Deux Masses .....	42
3) Relation à Trois Masses : Autocalibration.....	43
II - VOCABULAIRE - DEMARCHE EXPERIMENTALE .....	44
III- REALISATION D'UNE MESURE .....	45
1) Balayage.....	45
a - Principe du Balayage.....	45
b - Cas Particulier de la Tension Accélétratrice.....	48
2) Grandeurs Mesurées.....	49
a - Tension Accélétratrice.....	49
b - Tension Déflectrice du Secteur Electrostatique...	49
c - Champ Magnétique.....	51
d - Comptage.....	51
3) Tension Totale vue par chaque Ion.....	53
a - Centre de Gravité d'un Pic.....	53
b - Tension Correctrice.....	54
c - Calibration de la Modulation de Balayage.....	54
d - Recentrage.....	55
e - Tension Totale.....	55
4) Calcul de l'Incertitude Expérimentale.....	55
Incertitude      Limite.....	57
CHAPITRE C - RESULTATS EXPERIMENTAUX .....	59
I - MODE DE PRESENTATION DES RESULTATS .....	60
II - RESULTAT D'UNE MESURE .....	63
1) Critères d'Acceptation ou de Rejet.....	63
a - Précision sur les Tensions dites "Secondaires"...	63
b - Largeur des Pics.....	63
c - Axes et Dispersion des axes.....	65
d - Mesures de Tension.....	65
2) Technique de Dépouillement.....	66

III - RESULTAT D'UNE SERIE DE MESURES .....	66
1) Moyenne Pondérée.....	66
2) Résultats.....	68
IV - COMBINAISON DES SERIES DE MESURES .....	75
1) Principe.....	75
2) Première Méthode : Pas à Pas.....	77
a - Références Primaires uniquement.....	78
b - Références Primaires et Secondaires.....	80
c - Redétermination de Masses Connues.....	80
d - Résultats.....	81
3) Seconde Méthode : Globale .....	81
a - Méthode de Linéarisation.....	82
b - Rappels sur la Méthode des Moindres Carrés.....	85
c - Résultats.....	85
d - Stabilité des Résultats.....	91
e - Comparaison avec la Méthode "Pas à Pas".....	93
f - Redétermination de Masses Connues.....	95
g - Résultats Actualisés.....	95
V - ISOMERES ET CONTAMINATIONS .....	98
1) Isomères.....	98
2) Isobares.....	103
3) Autres Contaminations.....	105
4) Synchromètre à Radio-Fréquence.....	105
VI - RESULTATS .....	106
Problème de $^{94,96}\text{Rb}$ .....	111
Problème de $^{224}\text{Fr}$ .....	112
Dérives d'ensemble des Mesures en Chaînes.....	113
VII - MASSES "SECONDAIRES".....	114



## CHAPITRE D - "POUVOIR DE PREDICTION" DES MODELES NUCLEAIRES ..... 119

### I - REVUE DES PRINCIPALES METHODES DE PREDICTION DES MASSES ..... 120

- 1) Les Relations de Masses..... 121
  - a - "Systématiques" de WAPSTRA..... 121
  - b - Relations Locales de GARVEY et KELSON..... 121
- 2) Les Formules de Masses Semi-Empiriques..... 122
  - a - Formules Basées sur des Modèles Collectifs..... 122
  - b - Formule Basée sur le Modèle des Couches..... 124
- 3) Méthodes Fondamentales..... 124

### II - COMPARAISON AVEC LES PREDICTIONS ..... 128

## CHAPITRE E - STRUCTURES NUCLEAIRES DEDUITES DE L'ETUDE DES DIFFERENCES FINIES ..... 137

### I - ENERGIES DE SEPARATION $S_n$ ET $S_{2n}$ ..... 139

- 1) Effets de Couches..... 143
  - a - Couches Majeures..... 143
  - b - Sous-Couches..... 143
  - c - Comparaison avec les Modèles..... 147
- 2) Déformations..... 149
  - a - Césium au Voisinage de  $N = 90$ ..... 151
  - b - Rubidium au Voisinage de  $N = 60$ ..... 159
- 3) Autres "Anomalies"..... 163
  - a - Rubidium au Voisinage de  $N = Z = 37$ ..... 163
  - b - Francium au Voisinage de  $A = 224$ ..... 165

### II - ENERGIES D'APPARIEMENT ..... 165

- 1) Information Expérimentale..... 165
- 2) Comparaison avec les Modèles..... 169
  - a - Effets de Couches sur l'Energie d'Appariement... 172
  - b - Voisinage de  $N = Z$ ..... 173

CONCLUSION .....	179
APPENDICES .....	181
1 - DEFINITIONS RELATIVES AUX MASSES .....	183
2 - OPTIQUE MATRICIELLE .....	189
3 - CALCULS D'INCERTITUDES .....	195
4 - CALIBRATION DE LA MODULATION DE BALAYAGE .....	201
5 - METHODE DES MOINDRES CARRÉS .....	207
REFERENCES .....	211





## INTRODUCTION

### INTERET DES MESURES DE MASSES

Une des données fondamentales qui caractérisent un noyau atomique, est sa masse, celle-ci étant directement reliée aux valeurs propres de l'Hamiltonien qui le décrit.

Aujourd'hui, on connaît expérimentalement et avec une grande précision ( $10^{-7}$  à  $10^{-8}$ ) la masse de la plupart des noyaux stables et de ceux qui sont proches de la stabilité.

Il nous a paru intéressant d'étendre les mesures de masses à des noyaux très éloignés de la stabilité, dits noyaux exotiques, afin de vérifier la validité des méthodes de prédiction des masses venant de différents modèles et qui sont basées sur les connaissances issues de noyaux proches de la stabilité. Cette extension peut aussi permettre une meilleure estimation des limites de la stabilité nucléaire, qui présentent un grand intérêt en astrophysique. De plus une étude systématique de toute une série de noyaux qui ne varient, les uns par rapport aux autres, que par un nombre limité de paramètres (dans notre cas, le nombre de neutrons), permet de mettre claire-

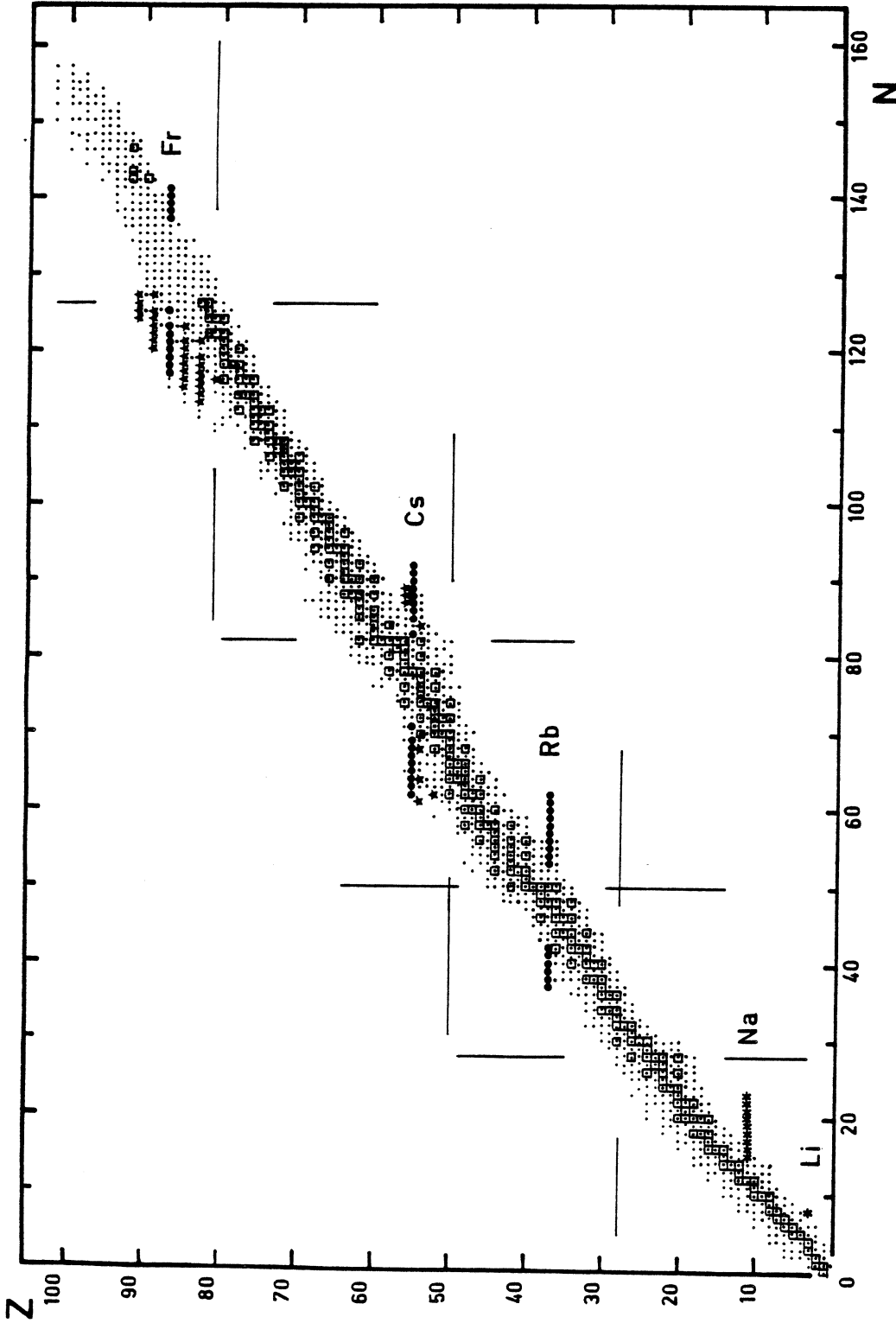


Figure 1 - Distribution dans le plan  $(N, Z)$  des noyaux de masse atomique connue (points fins) [Wap 77]. Les noyaux stables sont représentés par des carrés. Les points gras indiquent les noyaux de Rb, Cs et Fr dont la masse est mesurée ici. Les étoiles localisent les "masses secondaires" qui sont déduites des précédentes. Les noyaux de Li et Na (astérisques) sont les premiers [Thi 75] dont la masse a été mesurée par spectrométrie de masse en ligne.

ment en évidence certains effets dus à la structure nucléaire, tels que les fermetures de couches, l'apparition de zones de déformations et les effets dûs à l'appariement des nucléons proches de la surface.

C'est grâce aux peu nombreuses séries étudiées jusqu'à présent, que les nombres magiques ont été mis en évidence et que des anomalies ont été découvertes dans la région des terres rares [Bar 64] et pour les isotopes du sodium [Thi 75], anomalies qui ont pu être mises en relation, dans ces deux cas, avec des déformations. Nous nous sommes donc attachés à réaliser des études systématiques de longues séries de noyaux.

## PRECISION DES MESURES

La précision souhaitable pour de telles mesures semble être d'une centaine de keV, ou mieux, pour plusieurs raisons :

i) la précision, avec laquelle sont connues les masses des noyaux proches de la stabilité, va de 1 à 100 keV ;

ii) la précision qui est nécessaire pour départager, éventuellement, les estimations déduites des différents modèles ou formules est de quelques centaines de keV ;

iii) enfin, et surtout, la précision, qui permet de saisir les nuances de l'évolution de la surface nucléaire avec le nombre de nucléons, semble aussi être de l'ordre de la centaine de keV.

## METHODE EXPERIMENTALE

La méthode de mesure de masses par spectrométrie de masses, a été cantonnée, jusque récemment, à l'étude de noyaux stables ou de longue durée de vie. Il est évident [Joh 70] que l'installation d'un spectromètre de masse, en ligne, auprès d'un accélérateur de particules, rend accessibles des noyaux très exotiques. C'est ce qui a été réalisé pour la première fois auprès du PS du CERN pour la mesure de masses d'isotopes de Na ( $Z = 11$ ) très riches en neutrons [Rig 72], [Thi 75], ouvrant ainsi une brèche profonde (figure 1) dans le domaine des noyaux peu stables.

Le travail décrit dans cette thèse découle, en droite ligne, du principe de la spectrométrie de masse en ligne, exposé par R.Klapisch dans sa thèse en 1966 [Kla 66] et des travaux de C.Thibault [Thi 71] et C.Rigaud [Rig 72] dont nous venons de faire état.

L'originalité de ce travail réside dans la mesure, avec une bonne précision, des masses de noyaux, de numéro atomique  $A$  élevé, de longues séries isotopiques. Ces mesures ont été réalisées à l'aide d'un spectromètre de masse de haute résolution qui permet d'étudier les noyaux radioactifs produits par le séparateur d'isotopes en ligne, ISOLDE, avec un accélérateur, le S.C. du CERN.

Dans un premier chapitre nous décrivons le dispositif expérimental, et dans le suivant la méthode de mesure.

Les résultats expérimentaux obtenus pour les isotopes de Rb ( $Z = 37$ ), Cs ( $Z = 55$ ) et Fr ( $Z = 87$ ) sont présentés au troisième chapitre, ainsi que les "masses secondaires" déduites de ces résultats. La figure 1 met en relief l'extension apportée ainsi à la connaissance des masses des noyaux exotiques. Dans ce troisième chapitre seront également abordés les problèmes liés aux isomères et aux autres contaminations.

Les deux derniers chapitres, enfin, sont consacrés à l'interprétation de ces résultats : l'un permet de confronter ceux-ci aux estimations des principales méthodes de prédiction, pour en étudier les "pouvoirs de prédiction" ; l'autre permet d'obtenir, à partir de l'étude des différences finies de la surface de masse, des informations sur la structure nucléaire.

## CHAPITRE A

### DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Le principe de la mesure des masses atomiques par spectrométrie de masse repose sur la propriété suivante : à champ magnétique constant, des ions de masse  $M_A$  et  $M_B$  suivent la même trajectoire dans le spectromètre à condition que toutes les tensions qui leur sont appliquées (accélération et déflexion) soient telles que  $M_A V_A = M_B V_B$ .

Le rapport des deux masses  $M_A/M_B$  est alors déterminé par la mesure du rapport des tensions correspondantes  $V_B/V_A$ .

La masse d'un noyau formé de  $A$  nucléons est de l'ordre de  $A \cdot 10^6$  keV. Nous souhaitons atteindre une précision absolue de 100 keV, ce qui représente une précision relative de  $5 \times 10^{-7}$  pour  $A = 200$ . Il est donc nécessaire que la stabilité du champ magnétique et la précision des mesures de tension soient du même ordre de grandeur.

---



D'autre part, nous verrons par la suite, que les tensions exactes qui déterminent l'identité des trajectoires, sont reliées aux déterminations des centres de gravité des faisceaux. Exprimée en masse, la précision relative d'une telle position  $dM/M$  peut se décomposer en deux termes :

$$\frac{dM}{M} = \frac{dM}{\Delta M} \times \frac{\Delta M}{M}$$

où  $\Delta M$  est la largeur du faisceau dans le plan focal image. Le premier terme représente la précision avec laquelle on peut déterminer le centre de gravité de ce faisceau par rapport à sa largeur. Il dépend de la statistique (l'intensité du faisceau) et une valeur de l'ordre de  $10^{-3}$  peut être atteinte si cette intensité est suffisante. Le second terme représente le pouvoir de résolution du spectromètre. Il est alors clair, que si pour mesurer les masses des isotopes de sodium ( $A \approx 30$ ) il suffisait d'une résolution supérieure à 300, les mesures des masses des isotopes de francium ( $A \approx 200$ ) nécessiteront une résolution supérieure à 2000. Une telle résolution qui n'est pas aisément accessible avec des spectromètres à un seul étage, le devient avec des spectromètres à double focalisation classiques.

L'ensemble du dispositif expérimental que nous allons décrire a donc été conçu pour répondre aux différentes exigences que nous venons d'indiquer, tout en conservant une transmission aussi élevée que possible pour étendre les mesures à des noyaux éloignés de la vallée de stabilité, pour lesquels la production est généralement faible. Nous présenterons les différentes parties de ce dispositif, en suivant l'itinéraire des noyaux dont nous voulons mesurer la masse, depuis leur formation jusqu'à leur détection.

Ces noyaux sont fournis par le séparateur d'isotopes en ligne ISOLDE au CERN sous la forme d'un faisceau d'ions de 60 keV d'énergie, séparé en masse et focalisé sur la source de notre spectromètre, où ils sont arrêtés et ionisés à nouveau afin d'être accélérés à une énergie bien définie.

Le faisceau d'ions est ensuite analysé par le spectromètre de masse. Celui-ci comprend (voir plus loin figure 7), entre la fente de définition (ou fente d'entrée) et la fente image (ou fente de sortie), un champ électrostatique suivi d'un champ magnétique orthogonal au premier, dans une configuration

dérivée de la géométrie "Mattauch-Herzog", assurant ainsi simultanément les focalisations en énergie et en direction, d'où un pouvoir de résolution élevé de l'appareil.

A leur sortie du spectromètre, les ions sont détectés par un multiplicateur d'électrons dans un montage qui élimine le bruit de fond radioactif. Le balayage du faisceau devant la fente de sortie, en synchronisation avec la détection, permet la détermination précise du centre de ce faisceau.

### Chronologie

Le spectromètre a été adapté et réglé assez rapidement pour être installé au CERN auprès d'ISOLDE en février 1976.

Dans l'ensemble des expériences réalisées alors, en 1976 et 1977, il nous faut distinguer deux sous-ensembles, liés à des méthodes de mesure des tensions différentes (cf. B-III-2b), la plus récente étant 10 fois plus précise. Le premier sous-ensemble comprend des mesures de mise au point et une étude des isotopes du rubidium déficients en neutrons (de  $A = 80$  à  $A = 75$ ). Le second sous-ensemble comprend le reste du programme : les isotopes de césium déficients en neutrons (jusque  $A = 117$ ) ; puis ceux du rubidium déficients en neutrons jusque  $A = 74$  en utilisant pour la première fois un détecteur à ruban mobile qui élimine le bruit de fond radioactif (cf. A-V-2) ; et enfin, les isotopes de Rb et Cs riches en neutrons (jusque respectivement  $A = 99$  et  $A = 147$ ) et de Fr (de  $A = 204$  à  $A = 228$ ).

En 1978 le spectromètre a été rapatrié à Orsay pour permettre des réglages plus soignés et atteindre ainsi une résolution dix fois plus élevée.

C'est à ce moment que se situent l'exploitation des résultats obtenus jusque là et la rédaction de cette thèse où nous voudrions tout à la fois fixer un acquis et esquisser quelques projets.

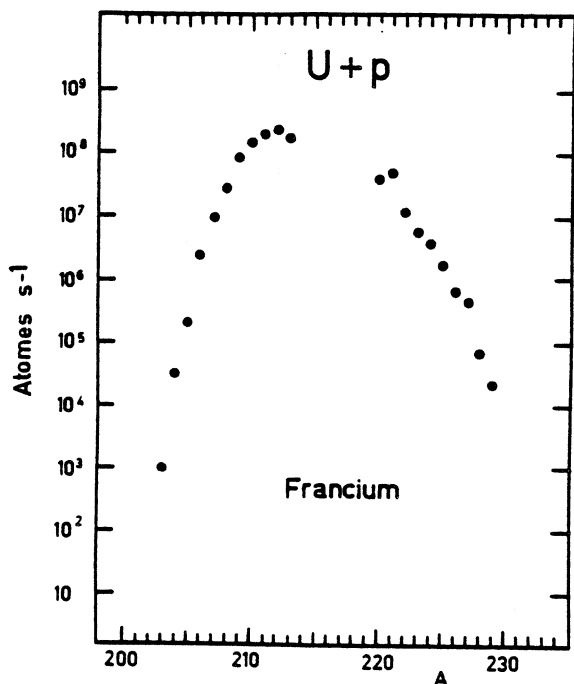
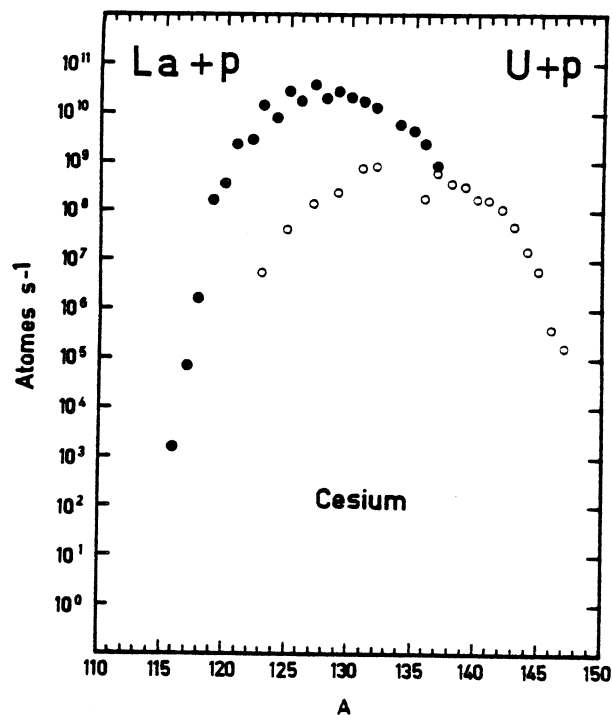
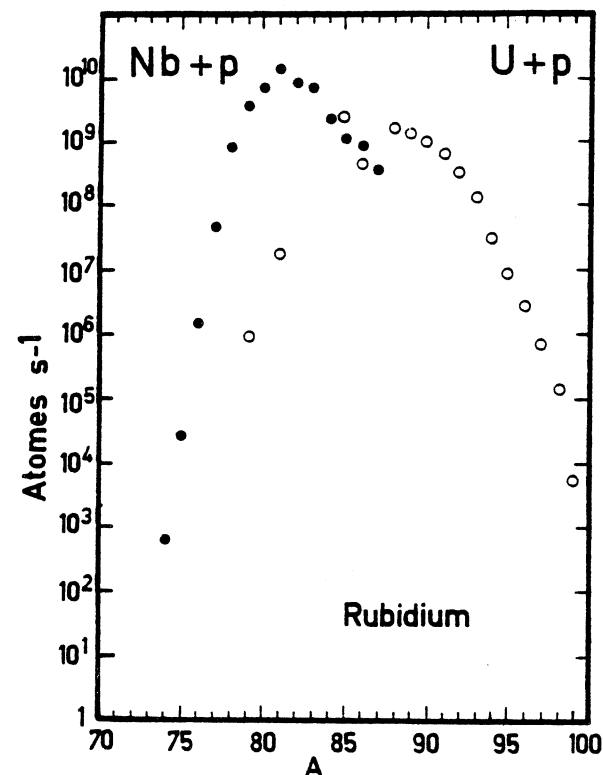


Figure 2 - Courbes de production, à ISOLDE, des isotopes de Rb, Cs et Fr, normalisées à 1  $\mu$ A.

Symboles pleins: spallation  
d'une cible de Nb en poudre,  
de La fondu ou d'U graphité.  
Symboles clairs: fission d'une  
cible d'uranium graphité.

## I - PRODUCTION DES NOYAUX EXOTIQUES

Les noyaux, que nous allons étudier ici, sont produits à ISOLDE [Rav 79], dans des réactions nucléaires induites par le faisceau de protons du Syncho-Cyclotron (S.C.) du CERN. Ces protons ont une énergie de 600 MeV et leur intensité voisine 1  $\mu$ A.

Dans une cible d'uranium, les réactions de fission produisent préférentiellement des isotopes riches en neutrons que nous appellerons par la suite isotopes "lourds" : ainsi sont produits les isotopes lourds de Rb et de Cs (figures 2a et b). Dans des cibles de numéro atomique Z légèrement supérieur à celui des éléments que nous voulons étudier, des réactions de spallation [Thi 71] produisent des isotopes déficients en neutrons que nous appellerons "légers" : ainsi, les isotopes légers de Rb ( $Z = 37$ ) sont produits dans une cible de Nb ( $Z = 41$ ), ceux de Cs ( $Z = 55$ ) dans une cible de La ( $Z = 57$ ), et les isotopes de Fr ( $Z = 87$ ) sont produits dans une cible de U ( $Z = 92$ ).

Le tableau 1 indique les caractéristiques des cibles utilisées pour l'obtention des isotopes des éléments alcalins Rb, Cs et Fr. Les figures 2 a, b et c présentent les taux de production correspondants. Le "blanc" que l'on observe sur la figure 2 c, entre les masses  $A = 214$  et  $219$ , est dû aux isotopes de très courte durée de vie (de l'ordre de la usec, alors que le temps de diffusion dans la cible est de l'ordre de la seconde).

**TABEAU 1 : Cibles utilisées pour la production des noyaux étudiés dans cette thèse**

Noyaux produits	Cible	Epaisseur	Température
Rb "légers"	Nb en poudre	53 g/cm <sup>2</sup>	2200°C
Cs "légers"	La fondu	140 g/cm <sup>2</sup>	1300°C
Rb "lourds"	<div style="display: inline-block; vertical-align: middle;"> <math>\left\{ \begin{array}{l} \text{Uranium} \\ \text{(imprégné dans} \\ \text{un tissu de} \\ \text{graphite)} \end{array} \right\}</math> </div>	12 à 14 g/cm <sup>2</sup>	2000°C
Cs "lourds"			
Fr			

Ces figures soulignent, par ailleurs, l'importance de la sensibilité du dispositif expérimental qui dépend essentiellement de la transmission du spectromètre (cf. A-IV-5). La limite de sensibilité atteinte ici est de 200 atomes par seconde. Avec  $10^4$  atomes par seconde, une accumulation de données d'environ une heure au total nous a permis d'atteindre une précision expérimentale de 100 keV.

## II - SELECTIVITE

### 1) Principe

Dans les réactions nucléaires considérées, un grand éventail de noyaux est produit. Si l'on veut pouvoir analyser, à un instant donné, un isotope bien défini (N, Z), sans contamination, il est nécessaire d'effectuer une double sélection, par exemple, une en masse  $A = N + Z$  et une en Z.

La sélection en masse est assurée par les champs magnétiques d'ISOLDE et de notre spectromètre.

Celle en Z peut être obtenue par les propriétés chimiques de l'élément dont nous étudions les noyaux. En effet les noyaux produits dans la cible sont thermalisés et neutralisés. Ils sortent de la cible par diffusion thermique (volumique et surfacique) et sont ensuite ionisés par effet thermoionique. Ces deux processus dépendent fortement des propriétés chimiques des atomes considérés, donc de la valeur de Z.

Le premier de ces deux processus, la diffusion, est une fonction du temps composée de plusieurs exponentielles. On définit généralement le "temps de diffusion" comme étant le temps nécessaire pour que la moitié des atomes, produits à un instant donné, sortent du milieu considéré. Ce temps de diffusion décroît rapidement lorsque la température augmente.

Par thermoionisation et pour des ions positifs, le rapport du nombre  $n^+$  d'ions au nombre  $n^0$  d'atomes est donné par la loi de SAHA-LANGMUIR :

$$\frac{n^+}{n^0} = \frac{g^+}{g^0} e^{\frac{W-\phi}{kT}}$$

$g^+$  et  $g^0$  étant les poids statistiques  
 $W$  le travail de sortie de l'ioniseur et  
 $\phi$  le potentiel d'ionisation de l'atome.

La séparation en  $Z$  peut également être obtenue dans le plan focal du spectromètre de masse si le pouvoir de résolution de celui-ci est suffisamment élevé pour séparer les isobares.

## 2) Les Alcalins

Le temps de diffusion propre à ISOLDE, pour les éléments Rb, Cs et Fr, étudiés ici, est en général de plusieurs dixièmes de seconde. Il en résulte une forte diminution des taux de production des isotopes de plus courte durée de vie. Par exemple, le taux de production de  $^{74}\text{Rb}$  (65 msec) est environ 20 fois plus faible que celui calculé par la formule semi-empirique de RUDSTAM [Rud 66] ajustée sur les isotopes à plus longue durée de vie, à cause des pertes par diffusion volumique dans la cible de Nb en poudre d'ISOLDE.

Quant aux rendements d'ionisation,

$$R = \frac{n^+}{n^+ + n^0}$$

des éléments Rb, Cs et Fr considérés ici, avec un ioniseur en tantale, ils sont voisins de 100 % (Tableau 2). Les autres éléments par contre sont très fortement défavorisés.

**TABLEAU 2** : Rendements d'ionisation de quelques éléments, sur des surfaces de tantale et de rhénium

	$\phi$ (eV)	$T_a$ (W = 4,37 eV) 1200°C	$R_e$ (W = 5,0 eV)	
			1200°C	2000°C
Rb	4,18	0,7	$\sim 1$	$\sim 1$
Cs	3,89	0,95	$\sim 1$	$\sim 1$
Fr	4	0,95	$\sim 1$	$\sim 1$
Sr	5,69	$10^{-6}$	$2 \times 10^{-3}$	$1,4 \times 10^{-2}$
Ba	5,21	$6 \times 10^{-4}$	$10^{-1}$	$1,5 \times 10^{-1}$
Ra	5,28	$2,5 \times 10^{-4}$	$5 \times 10^{-2}$	$10^{-1}$
Terres	5,5	$1,5 \times 10^{-5}$	$10^{-2}$	$5 \times 10^{-2}$
Rares	à	à	à	à
(sauf Dy)	6,2	$1,5 \times 10^{-9}$	$2 \times 10^{-4}$	$10^{-3}$

### 3) Les Autres Eléments

#### a - Alcalino-Terreux et Terres-Rares

Leurs temps de diffusion à ISOLDE sont comparables à ceux des alcalins. Leur ionisation, par contre, exigera un ioniseur à travail de sortie plus élevé, comme le rhénium (W = 5,0 eV) et des températures assez hautes (Tableau 2).

La sélectivité chimique n'est plus efficace et la contamination isobarique, par exemple Cs pour Ba et Rb pour Sr (Tableau 2) devra être résolue par d'autres moyens :

- i) Utilisation d'un composé chimique : dans le cas du baryum par exemple, un isotope de masse A peut être fluoré dans la source du séparateur [Rav 75], [Put 81]. Le composé chimique formé  $BaF^+$  a une masse A + 19. Pour les isotopes riches en neutrons il n'y a donc plus de contamination par Cs étant donné que  $^{A+19}Cs$  a une section efficace de production négligeable par rapport à celle de  $^ABa$ . De plus, dans notre cas, les ions étant arrêtés et réémis (cf. A-III-1 ; p. 15) la molécule BaF sera cassée et le spectromètre pourra alors être réglé sur la masse A, ce qui éliminera totalement  $^{A+19}Cs$ .

ii) Haute Résolution : si l'on peut atteindre une résolution suffisamment élevée (par exemple 50.000), des isobares de  $A = 160$  et ayant une différence de masse de 3 MeV pourraient être séparés. Notons par ailleurs, que d'une façon générale, la différence de masses entre isobares croît lorsqu'on s'éloigne de la ligne de stabilité.

Par exemple, pour les isotopes de Yb ( $Z = 70$ ) déficients en neutrons pour lesquels la production est suffisante jusque  $A = 155$  [Rav 76], le tableau 3 donne en fonction de la résolution le nombre d'isotopes de Yb séparables de leurs isobares.

**TABEAU 3 : Nombre d'isotopes de Yb séparables de leurs isobares en fonction de la Résolution**

Résolution	$\Delta M$ séparable (MeV)	Nombre d'isotopes mesurables
20.000	8	aucun
30.000	6	1
40.000	4	5
60.000	2,7	8 + 1 connu
80.000	2	9 + 2 connus

#### *b - Halogènes*

Nous ne disposons pas à l'heure actuelle de données expérimentales précises sur la diffusion volumique des halogènes dans les solides. Une expérience préliminaire sur Br et Cl faite par une équipe d'ISOLDE [Iso 79] indiquerait un temps de diffusion de plusieurs secondes avec les deux cibles essayées : Nb en poudre pour les isotopes déficients en neutrons ou UC/graphite pour les riches.

En ce qui concerne l'ionisation, la loi de SAHA-LANGMUIR pour l'ionisation négative devient :

$$\frac{n^-}{n^0} = \frac{g^-}{g^0} e^{\frac{A-W}{kT}}$$



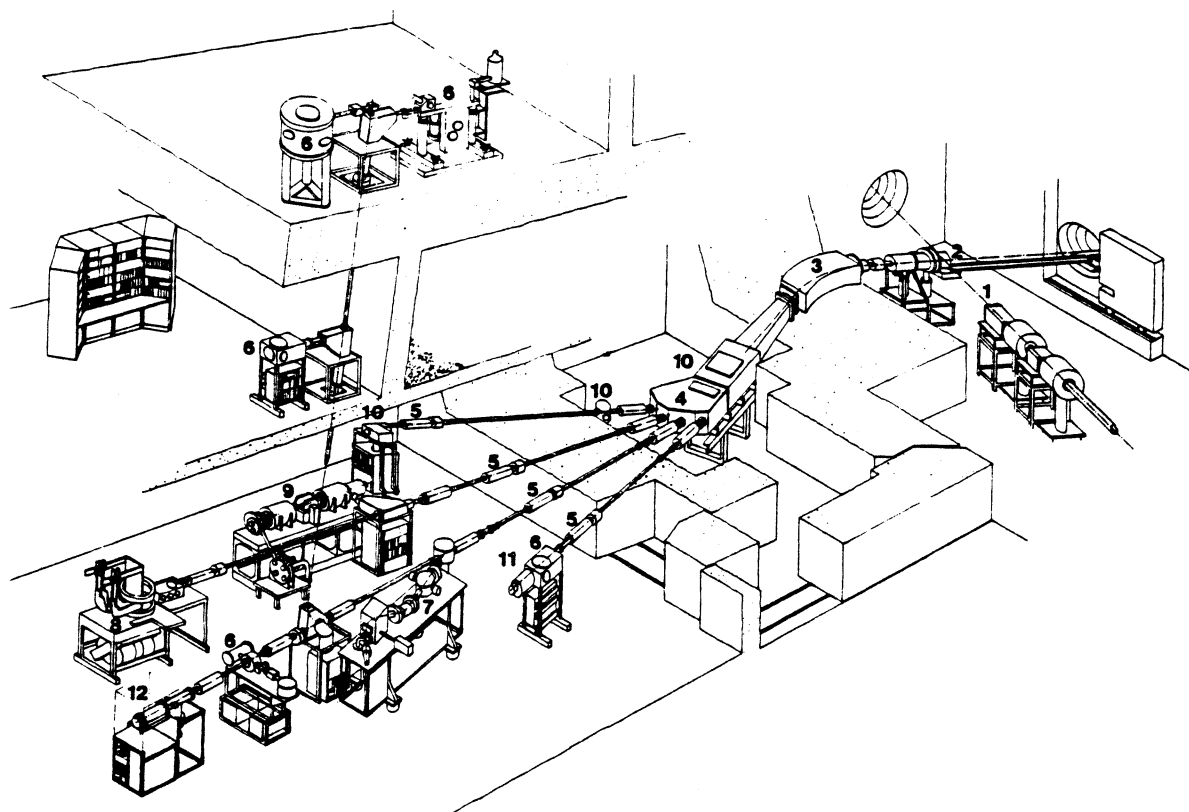


Figure 3 - Vue en perspective du séparateur d'isotopes en ligne, ISOLDE.  
Le faisceau de protons de 600 MeV (1) en provenance du SC est focalisé sur la cible (2) qui joue le rôle de source d'ions radioactifs. Le faisceau d'ions subit une accélération de 60 keV et est analysé en masse par un aimant (3). L'aire de distribution (4) peut l'orienter sur la 2<sup>e</sup> ligne de faisceau sur laquelle est connecté le spectromètre de masse à double focalisation (7).

A étant l'affinité électronique, qui se situe pour les halogènes entre 3,1 et 3,6 eV. Le choix d'un ioniseur à faible travail de sortie, comme le carbure de tantale ( $W = 3,2$  à  $3,8$  eV) ou le borure de lanthane ( $W = 2,7$  eV) donne un rendement d'ionisation, à  $2000^{\circ}\text{C}$  et dans le moins bon des cas ( $3,8$  eV), de 1 % pour I, 5 % pour Br, 8 % pour F et 15 % pour Cl.

Le fort courant électronique, qui accompagne les ions négatifs, peut être simplement piégé par un champ magnétique auxiliaire.

### III - OPTIQUE SOURCE

Les noyaux produits dans la cible d'ISOLDE, et qui diffusent en tant qu'atomes dans le matériau de la cible, sont ionisés et accélérés à 60 keV, séparés en masse et aiguillés sur une des lignes de faisceaux des salles d'expériences [Rav 76], en l'occurrence ici, la ligne n° 2 (figure 3). Les déflecteurs et quadrupôles d'ISOLDE orientent et focalisent le faisceau d'ions sur la source de notre Spectromètre de Masse à double focalisation. Le faisceau ainsi obtenu a un diamètre de 2 mm avec une instabilité de  $\pm 1$  mm.

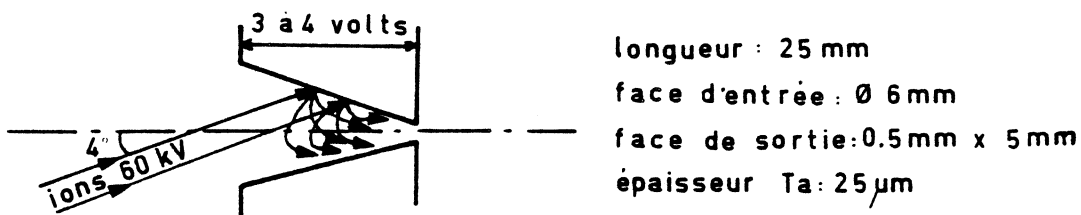
#### 1) Double Ionisation

Ces ions sont arrêtés et aussitôt réionisés afin d'être réaccélérés à une énergie bien définie, stable et réglable.

Ce travail en ligne permet d'accéder à des isotopes d'assez courte durée de vie. Le processus de double ionisation, bien que pouvant présenter une perte de rendement lors de la seconde ionisation, offre plusieurs avantages : plus grande propreté du faisceau, meilleure définition en énergie, et, surtout, possibilité d'effectuer des sauts de tensions pour alterner (à champ constant) les ions qui sont analysés par le spectromètre.

Pour cette seconde ionisation, nous avons utilisé un tube en tantale de  $25\text{ }\mu\text{m}$  d'épaisseur (voir schéma). Sa face d'entrée est circulaire, de 6 mm

de diamètre. Son axe fait un léger angle ( $4^\circ$ ) avec la direction du faisceau incident. Ce dernier est arrêté sur la face interne du tube, qui, chauffé aux environs de  $1200^\circ\text{C}$ , réémet, par thermoionisation, des ions d'énergie thermique. Le courant de chauffage (3 à 4 volts) guide les ions vers la sortie du tube de forme rectangulaire et de dimensions réduites : 0,5 mm de large et 5 mm de hauteur (principe de l'entonnoir). Le tube lui-même est porté à une haute tension (d'environ 10 kV) et sert de source d'ions à une optique accélératrice et focalisatrice, qui formera une image de cette source au niveau de la fente d'entrée F.E. du spectromètre de masse.



## 2) Géométrie de l'Optique Source

C'est une optique dite "à lentilles épaisses" telle qu'elle a été décrite et étudiée par Dietz dans [Die 59] et [Die 60]. Elle a été choisie pour son bon rendement. Nous avons pu étudier en détail son comportement en fonction des tensions appliquées aux différentes plaques, le faisceau étant visualisé directement à l'aide d'une galette de microcanaux (la description de cette dernière est donnée au § A-V-3 ; p. 39).

Cette optique (figure 4) comporte tout d'abord, devant la source (filament chez Dietz, tube ioniseur ici), un fort champ électrique extracteur de l'ordre de 1500 volts sur les 3,6 mm qui séparent la source de l'extractrice (Ext), suivi d'un champ focalisateur créé par une d.d.p. de 7000 volts environ entre l'extractrice et les deux demi-plaques (DP1 et DP2). La possibilité de déséquilibrer les tensions entre ces deux dernières permet de défléchir le faisceau suivant Ox (horizontalement) pour tenir compte d'éventuels décentrement de la source par rapport à l'axe de l'optique. Viennent ensuite :

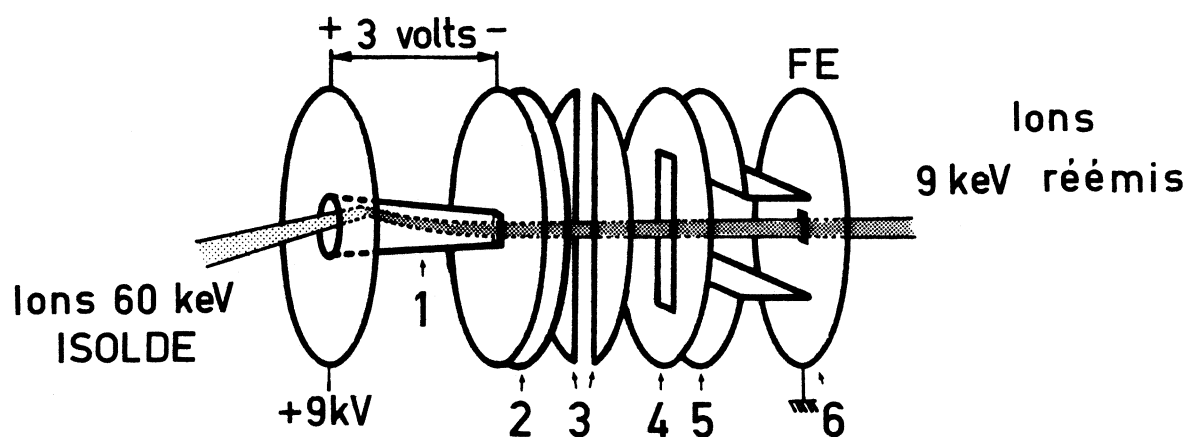


Figure 4 - Vue en perspective de l'Optique Source du spectromètre de masse à double focalisation. Le faisceau d'ions radioactifs venant d'ISOLDE s'implante sur la face interne de l'ioniseur (1), d'où il est réémis, accéléré et focalisé par l'ensemble des plaques qui suivent : l'extratrice (2), les plaques déflectrices horizontales (3), le collimateur (4), les plaques déflectrices verticales (5). La fente d'entrée F.E. (6), joue le rôle de point objet pour le spectromètre de masse.

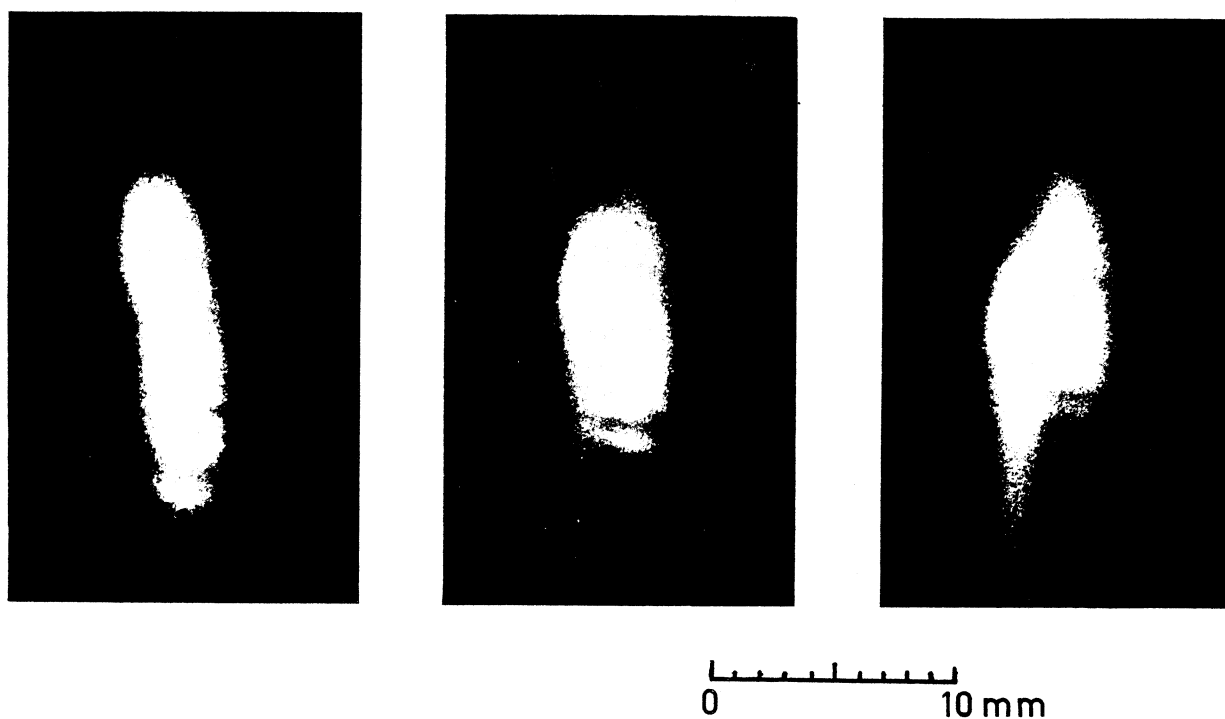


Figure 5 - Coupes du faisceau, 40cm après la fente d'entrée, pour trois valeurs de l'écart en tension entre le collimateur et les plaques déflectrices verticales ( $Z_1$ ,  $Z_2$ ). A gauche, écart maximum ; à droite, écart nul.

une plaque collimatrice (Coll) dont le rôle théorique est de limiter l'ouverture angulaire du faisceau ; des demi-plaques (Z1 et Z2) qui peuvent défléchir verticalement (Oz) le faisceau et enfin la fente micrométrique réglable (de 3  $\mu\text{m}$  environ à 200  $\mu\text{m}$ ).

Un montage particulier, hors spectromètre, a permis de placer la gallette de microcanaux au niveau (et à la place) de la fente d'entrée (F.E.) du spectromètre. De cette étude ont pu être déduites les conditions de focalisation de l'optique, l'influence des différents paramètres et l'étalonnage des demi-plaques défectrices DP1 et DP2. Le tableau 4 permet de comparer les valeurs des tensions adoptées par Dietz et celles que nous avons trouvées par cette méthode : elles sont relativement proches ; le champ extracteur que nous trouvons plus important (1693 volts au lieu de 1400 volts) est probablement dû à la configuration différente de la source (tube au lieu de ruban chez Dietz) ; les valeurs pour les plaques Coll et Z1-Z2 sont beaucoup plus rapprochées dans notre cas (92 volts) que pour Dietz (300 volts), car nous avons observé une importante influence de cet écart sur la focalisation verticale, un faible écart diminuant l'ouverture angulaire en Oz comme on le voit sur la figure 5 représentant le faisceau à 40 cm environ après F.E. pour 3 valeurs de cet écart.

TABLEAU 4 : Conditions de Focalisation de l'Optique Source utilisée ici, comparée à celles de Dietz [Die 60]. Les tensions sont données en volts.

	Dietz	Ce travail
Source	10000	10000
Ext	8600	8307
DP1-DP2	1700	1755
Coll	800	775
Z1-Z2	500	683
Fente	0	0

Ce même montage a permis de déterminer les conditions de focalisation de l'optique particulière [deS 79] (plaque supplémentaire entre Source et Extractrice pour le piégeage des électrons) qui pourraient être utilisées pour l'étude des ions négatifs.

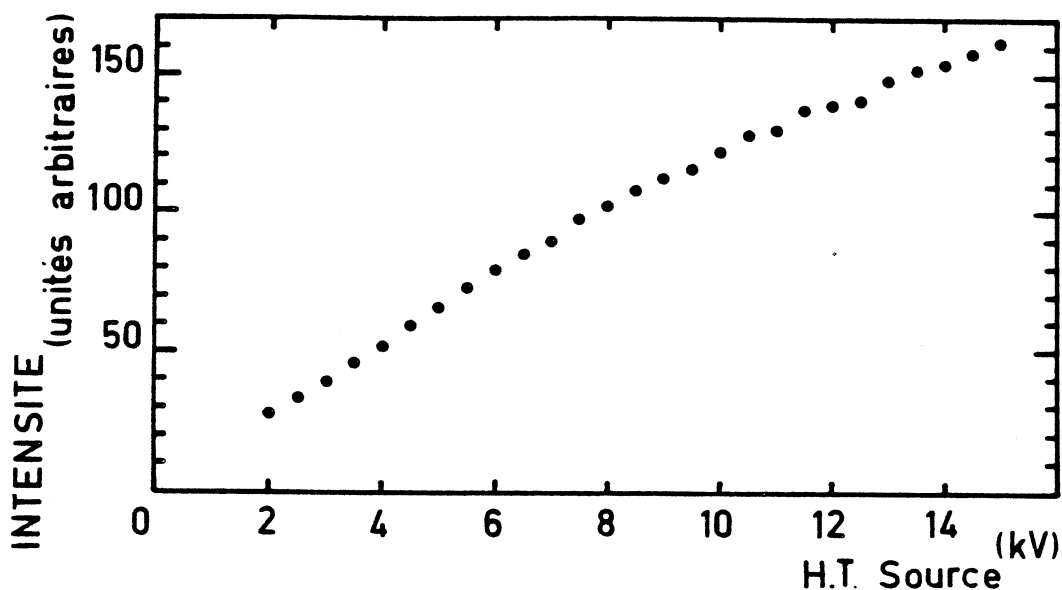


Figure 6 - Courbe de production de l'optique source, sans F.E., en fonction de la haute tension totale qui lui est appliquée. On observe ici une non-saturation de cette production dans le domaine étudié. De 9 à 14 kV cette production augmente de 36%.

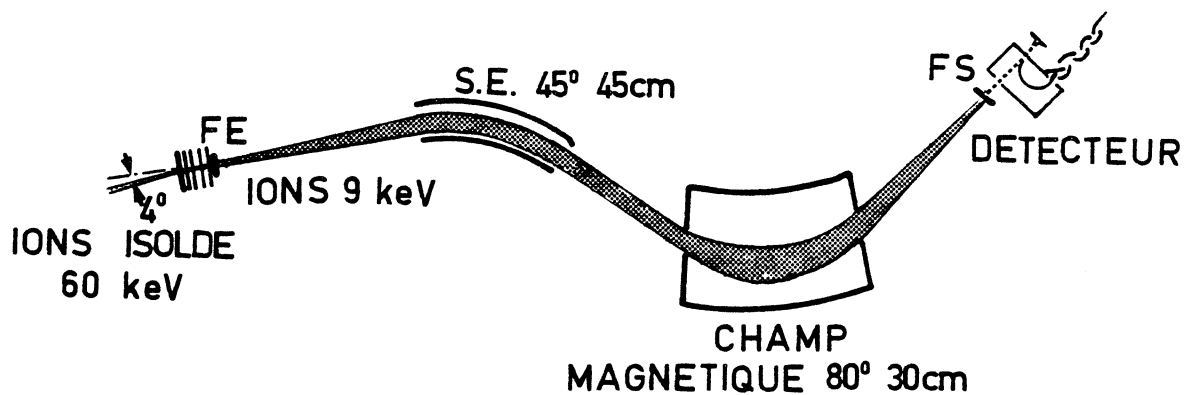


Figure 7 - Schéma du Spectromètre de Masse à Double Focalisation. Le faisceau d'ions radioactifs, après la traversée de la Fente d'Entrée F.E., est dévié par un champ électrostatique puis par un champ magnétique et est focalisé sur la Fente de Sortie F.S. derrière laquelle se trouve le système de détection.

Une étude en comptage avec le multiplicateur d'électrons (sans F.E.) montre (figure 6) d'une part que l'efficacité de l'extraction croît en fonction de la tension et d'autre part une non saturation de la production jusqu'à 15 kV. Nous avons cependant dû nous limiter à 9,7 kV, étant donné que nous ne disposions pas pour les expériences décrites ici d'alimentation de plus de 10 kV ayant une stabilité suffisante.

#### IV - SPECTROMÈTRE DE MASSE

##### 1) Géométrie : Mattauch-Herzog

Le Spectromètre de Masse proprement dit est une adaptation que nous avons faite d'une structure existante, fabriquée par la Thomson-CSF (n° TSN-218) pour d'autres applications avec un pouvoir de résolution  $R$  de l'ordre de 50.000 et pouvant atteindre 90.000, mais avec un faisceau sévèrement diaphragmé, donc une très basse transmission.

C'est un spectromètre de masse à double focalisation - en direction et en énergie - dérivé de la géométrie de Mattauch-Herzog. Il comprend (figure 7), à 450 mm de la fente d'entrée réglable, un Secteur Electrostatique (S.E.) sphérique de 450 mm de rayon et de  $45^\circ$  d'angle de déflexion suivi d'un aimant, à champ homogène et à faces d'entrée et sortie inclinées, qui donne aux ions une courbure de 300 mm et une déflexion de  $80^\circ$ , puis de la fente de sortie (F.S.) réglable également derrière laquelle un multiplicateur d'électrons sert de détecteur. Un système de balayage (en tension, dans notre cas) fait défiler le faisceau devant F.S. et permet, en synchronisant le système de détection, d'observer des pics d'intensité reliés à la structure de ce faisceau.

##### 2) Trajectoire Centrale des Ions

L'ion, de charge  $q$ , quitte l'ioniseur avec une énergie négligeable ( $\ll 1$  eV). Il est accéléré à travers l'optique de focalisation, à partir d'une tension  $+U$  à 0 ( $U$  de l'ordre de 10 kV) et acquiert ainsi une vitesse  $v$  telle que :



$$\frac{1}{2} Mv^2 = qU \quad (A.1)$$

Il est défléchi par le champ électrique transversal  $\vec{E}$  du S.E. (créé par une d.d.p.  $V$  sur une distance interplaque  $d$ , soit  $|\vec{E}| = \frac{V}{d}$ ), qui lui donne une courbure de rayon  $R_e$ . L'équilibre des forces électriques et d'inertie permet d'écrire :

$$qE = M \frac{v^2}{R_e} \quad (A.2)$$

Enfin, le champ magnétique,  $\vec{B}$ , orthogonal à  $\vec{E}$  et donc au plan de la trajectoire jusqu'ici suivie, lui fait décrire un arc de cercle, dans ce même plan mais en sens inverse, de rayon  $R_m$  tel que :

$$qvB = M \frac{v^2}{R_m} \quad (A.3)$$

En considérant les équations (A.1), (A.2) et (A.3) on obtient :

$$(A.1) \text{ et } (A.2) \Rightarrow E = 2 \frac{U}{R_e} \quad \text{ou encore} \quad V = \frac{2d}{R_e} U \quad (A.4)$$

$$(A.2) \text{ et } (A.3) \Rightarrow M \frac{V}{d} R_e = qB^2 R_m^2 \quad \text{ou encore} \quad B = \frac{\sqrt{R_e}}{R_m \sqrt{dq}} \sqrt{MV} \quad (A.5)$$

En conclusion, pour que l'ion suive la trajectoire centrale :

1) Le rapport  $\frac{U}{V}$  doit être bien défini (quelle que soit la masse de cet ion), soit

$$\frac{U}{V} = \frac{R_e}{2d} = \frac{450}{2 \times 16} = 14.0625$$

2)  $V$  étant donné, si l'on a une masse  $M$ , le champ magnétique  $\vec{B}$  doit satisfaire l'équation (A.5).

Conséquence immédiate : pour que deux ions de masse  $M_A$  et  $M_B$  (de même charge) suivent la même trajectoire dans le même champ  $\vec{B}$ , il faut et il suffit que toutes les tensions  $V_A$  et  $V_B$ ,  $U_A$  et  $U_B$  et d'autres s'il y en a, satisfassent à :

$$M_A V_A = M_B V_B \quad M_A U_A = M_B U_B \quad \dots\dots\dots (A.6)$$

ce qui est à la base du principe des mesures de masse relatives -  $M_B$  en fonction de  $M_A$  par exemple - (cf. B-I-1 ; p. 41).

Remarque : une généralisation du résultat exprimé par les équations (A.6) peut être trouvée dans l'article de Swann "The conditions for identical orbits in the case of two charged particles of unequal mass and unequal charge" [Swa 31] (voir également le "théorème" de Bleakney [Ble 36]).

Nous verrons néanmoins une dérogation, à cette règle très stricte, que nous aurons le droit de nous accorder, moyennant certaines précautions (cf. B-III-1b : "Balayage : Cas Particulier de la Tension Accélétratrice" ; p.48).

### 3) Etude du Faisceau

Nous venons de décrire la géométrie du spectromètre et la trajectoire centrale d'un ion. Nous allons étudier à présent les trajectoires suivies par des ions émis avec un certain angle  $\theta$  par rapport à l'axe ou avec une énergie un peu différente  $E + dE$ , afin de mettre en lumière les propriétés de focalisation du spectromètre de masse.

La position finale  $X_F$  du faisceau peut s'exprimer en fonction des coordonnées initiales ( $X_I, \theta_I, \delta_I$ ) dans le plan horizontal (avec  $\delta_I = \frac{dp}{p} = \frac{1}{2} \frac{dE}{E}$ ) par :

$$X_F = a X_I + b \theta_I + c \delta_I$$

le coefficient  $a$  représente le grandissement, les termes  $b$  et  $c$  expriment les focalisations, respectivement en direction et en énergie (de leur annulation simultanée résulte donc la propriété de double focalisation). Ces termes  $b$  et  $c$  peuvent être calculés à partir de l'expression matricielle ([Sep 67], [Dah 73]) donnée dans l'appendice 2.

Nous obtenons un système de 2 équations non linéaires,  $b = 0$  et  $c = 0$ , à 2 inconnues : l'angle d'entrée de l'aimant  $\beta_1$ , et la distance  $L_3$  de l'aimant à F.S.. Par le calcul, la solution obtenue donne  $L_3 = 400$  mm et

$\beta_1 = 27^\circ 5$ . Expérimentalement, la solution peut être déterminée en recherchant pour deux ou trois valeurs de  $\beta_1$  les positions de F.S. ( $L_3$ ) qui donnent respectivement les focalisations en direction ( $b = 0$ , tache la plus fine possible) et en énergie ( $c = 0$ , image qui ne se déplace pas en  $O_x$  avec des variations d'énergie des ions), puis  $L_3$  et  $\beta_1$  seront déterminés par interpolation.

L'enveloppe du faisceau a été déterminée par le programme OPTICS (cf. Appendice 2). Elle est représentée sur la figure 8. Les résultats théoriques ainsi obtenus correspondent bien aux observations expérimentales réalisées à l'aide d'une galette de microcanaux et l'on peut voir des exemples de telles coupes sur la figure 9.

#### 4) Focalisation en Energie

La focalisation en énergie  $c = 0$ , telle qu'exprimée ci-dessus et en annexe, n'est valable qu'en première approximation, pour de faibles variations de l'énergie.

Expérimentalement, en faisant varier la haute tension source (c'est-à-dire l'énergie des ions) on mesure la valeur de la tension S.E. (à champ magnétique constant) pour laquelle le faisceau passe par F.S.. On obtient ainsi la fonction représentée par la courbe de la figure 10. Dans le cas idéal où cette focalisation en énergie aurait été absolue, cette courbe serait une droite horizontale. Le point de focalisation optimale en énergie est donné par l'extremum de cette fonction (point A de la figure 10), ici donc à 9730 volts (soit pour  $U/V = 14.101$ ).

Cette courbe permet d'évaluer la stabilité à exiger de l'alimentation de la source. Nous remarquons que si nous voulons effectuer une mesure avec une précision relative de  $10^{-6}$ , soit 0,7 mV sur la tension du S.E., la HT source pourra se permettre une "instabilité" de 14 volts soit  $1,4 \times 10^{-3}$  (le facteur de focalisation en énergie est alors de  $\frac{1,4 \times 10^{-3}}{10^{-6}} = 1400$ ). Si à présent, nous voulons réaliser une mesure à  $2 \times 10^{-7}$ , la HT source devra avoir une stabilité de  $4 \times 10^{-4}$  (le facteur de focalisation est alors encore plus élevé : 2000).

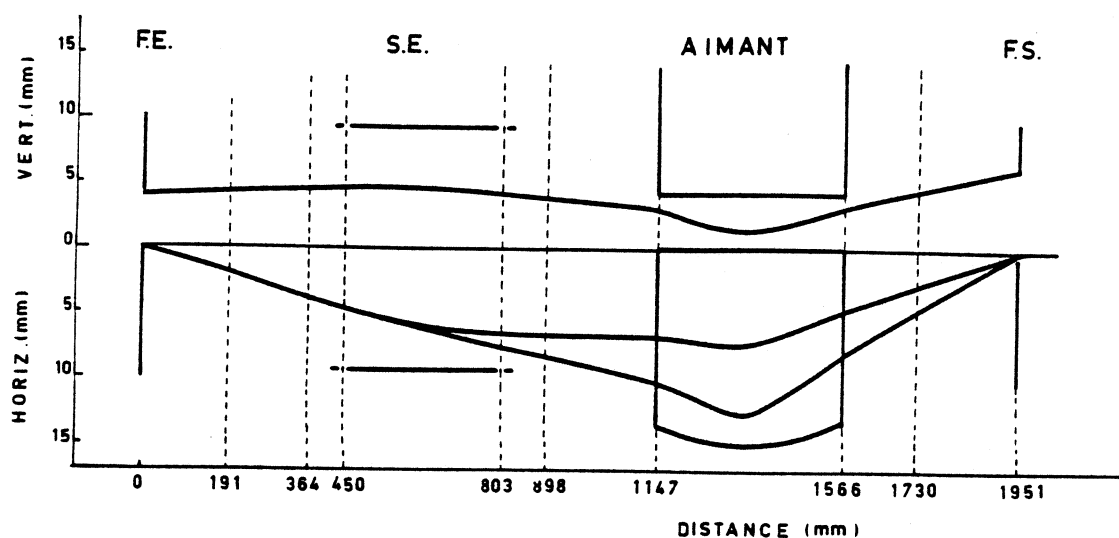


Figure 8 - Enveloppe du faisceau d'ions à l'intérieur du spectromètre de masse à double focalisation. La partie supérieure correspond au plan vertical passant par la trajectoire centrale, et la partie inférieure au plan horizontal. Le dédoublement de la courbe dans ce dernier plan correspond à des ions d'énergie différente ( $\Delta E/E = 10\%$ ). Les ouvertures du faisceau, dans ce calcul, au niveau de F.E. sont : largeur 100 $\mu$ m; hauteur 8mm ; ouverture angulaire horizontale 20mrad ; verticale 10mrad.

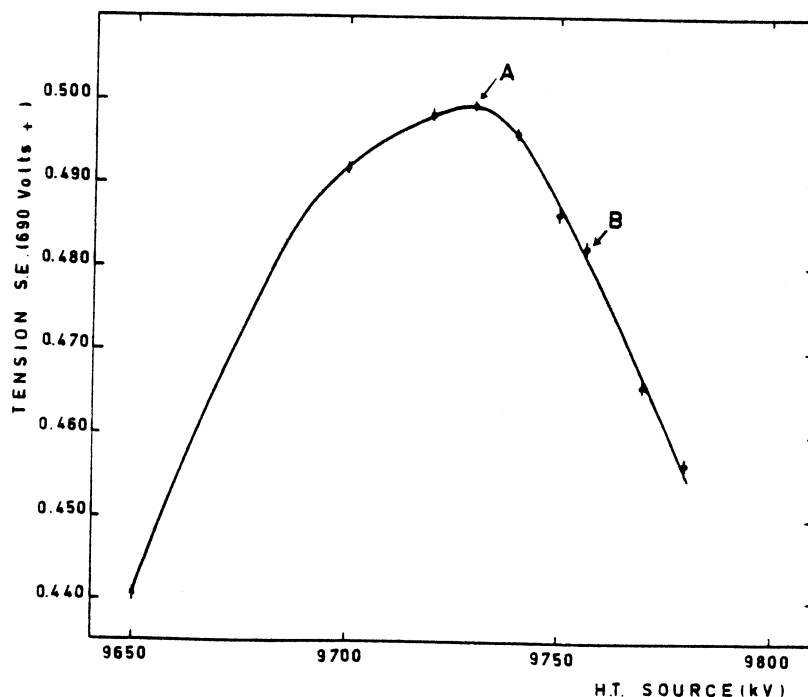


Figure 10 - Propriété de focalisation en énergie du spectromètre de masse. Dans le cas idéal d'une focalisation en énergie absolue, on aurait une droite horizontale. En A : point de fonctionnement optimal. En B : point de fonctionnement effectif lors des mesures de masse des isotopes de Rb, Cs et Fr.

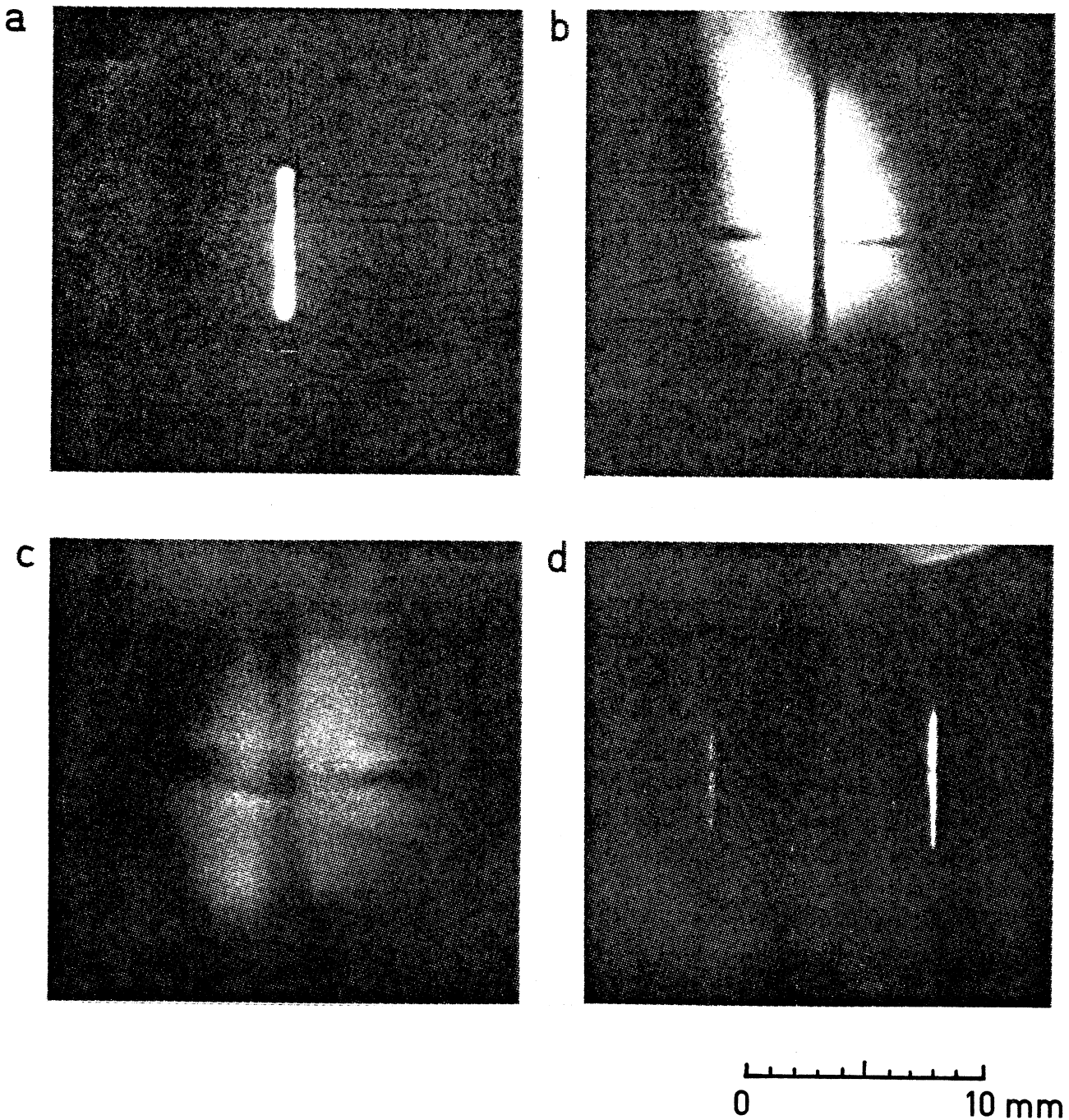


Figure 9 - Coupes du faisceau, réalisées avec une galette de microcanaux, en différents points du spectromètre de masse :

- a - au niveau de F.E. (sans la fente)
- b - à l'entrée du S.E.
- c - entre le S.E. et l'aimant
- d - au niveau de F.S.

En b et c on peut voir l'ombre d'un réticule placé entre F.E. et S.E. (position 191 sur la figure 8). On remarque, en d, deux raies :  $^{85}\text{Rb}$  (à droite) et  $^{87}\text{Rb}$  (à gauche), dix fois moins intense que la première (rapport d'implantation de l'échantillon étudié). La distance qui sépare ces deux raies caractérise la dispersion du spectromètre.

Par contre, si comme c'était le cas au cours de la série d'expériences sur les alcalins où l'appareil n'était pas encore réglé au mieux de ses possibilités, le point de fonctionnement est en B sur un flanc de la courbe, à 9760 volts (soit pour  $U/V = 14.145$ ), on voit que le rapport de focalisation n'est plus que de 200. Pour atteindre une précision de  $2 \times 10^{-7}$  sur la mesure il faut alors une stabilité de la HT source de  $4 \times 10^{-5}$ , ce qui, même dans ce cas extrême, est largement dans les possibilités de l'alimentation qui a été utilisée dans ces expériences ( $10^{-5}$ ).

## 5) Résolution et Transmission

### a - Résolution théorique

La résolution d'un spectromètre, ou pouvoir séparateur, est représentée par le rapport  $\frac{M}{\Delta M}$ ,  $\Delta M$  étant la largeur du faisceau correspondant à la masse M. On peut définir une résolution à mi-hauteur, à 20 % ou à 10 % suivant que  $\Delta M$  est mesuré à mi-hauteur, à 20 % ou à 10 % de la hauteur du pic. Nous n'utiliserons désormais que de la résolution à mi-hauteur, car c'est elle qui indique de manière simple la possibilité de séparer deux pics d'égale hauteur.

Connaissant la dispersion de l'appareil à une masse M donnée, la résolution peut être calculée en fonction de la largeur ( $X_F$ ) de l'image obtenue pour la masse M.  $X_F$  est connu en fonction de  $X_I$  :  $X_F = a X_I$ . Ici  $|a|$  est très voisin de 1 (voir appendice 2).

$$R = \frac{\text{Disp}}{X_F} \approx \frac{\text{Disp}}{X_I}$$

La distance séparant les pics des masses 85 et 87 du rubidium a pu être mesurée, directement dans le plan focal image, à l'aide de la galette de microcanaux (figure 9d) : elle est de 9 mm. La distance perpendiculaire entre masses à  $M = 86$  est donc :  $d = 4,5$  mm. La dispersion de l'appareil est donnée par :

$$\text{Disp} = d.M = 387 \text{ mm}$$

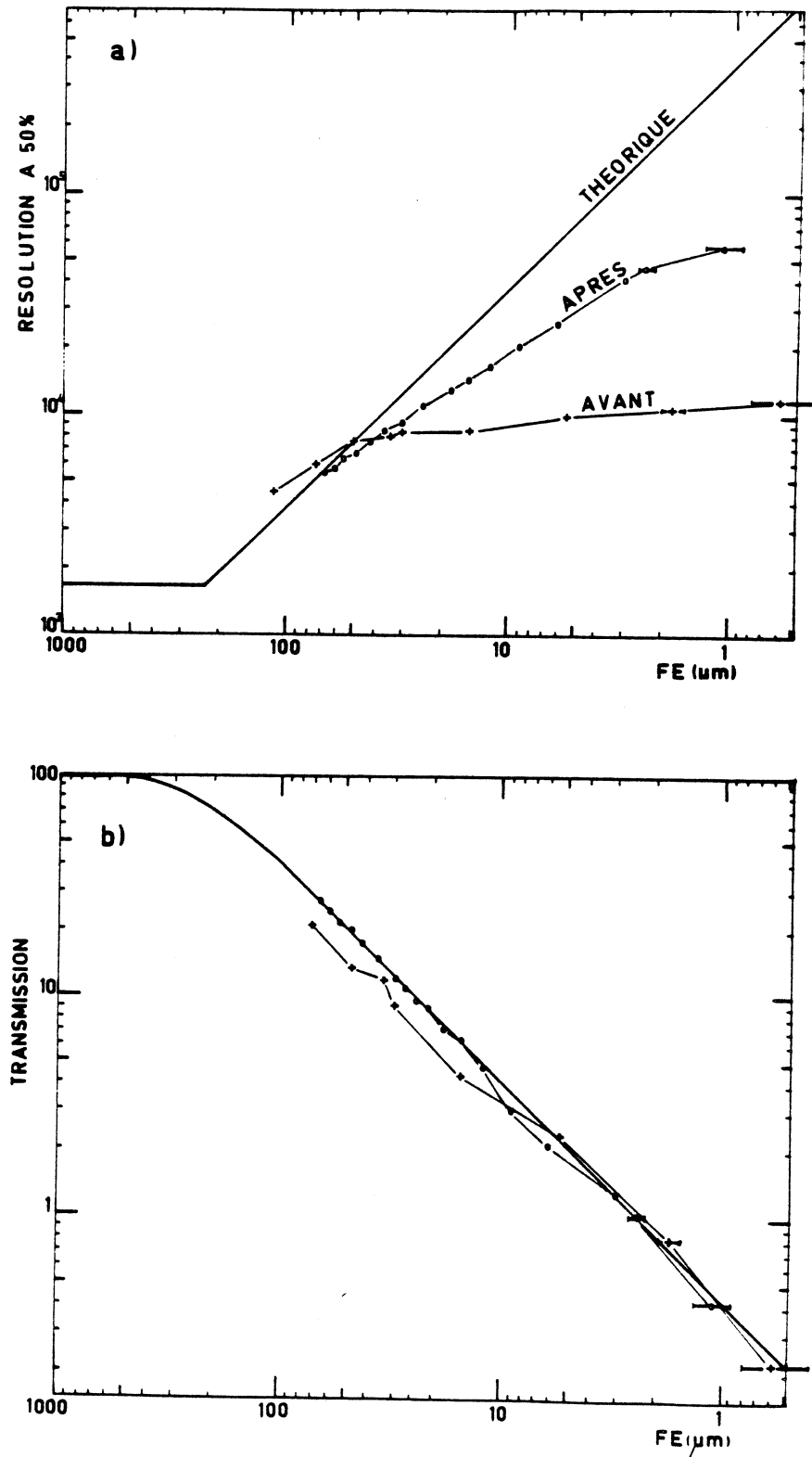


Figure 11 - Résolutions (a) et Transmissions relatives (b) théoriques et expérimentales, en fonction de la largeur de la fente d'entrée F.E..  
Trait plein : courbe théorique  
Croix : spectromètre tel qu'il était réglé lors des mesures de masse des isotopes de Rb, Cs, et Fr.  
Cercles: Spectromètre après optimisation.

et R devient, si on exprime  $X_I$  en  $\mu\text{m}$  :

$$R_{th} \approx \frac{387.000}{X_I}$$

Remarque : La dispersion calculée est de 413 mm, en assez bon accord donc avec la valeur expérimentale. Toutefois, dans la suite, seule cette dernière sera prise en considération.

La résolution théorique est représentée sur la figure 11a en fonction de l'ouverture de F.E. ( $F.E. = X_I$  pour  $F.E. \leq 233 \mu\text{m}$ , cf. § suivant).

#### *b - Résolution Expérimentale*

Sur la figure 11a sont également reportées les résolutions expérimentales mesurées lors du premier réglage de l'appareil (cf. A-I : "Chronologie") en 1975, courbe marquée "Avant". Cette courbe représente les conditions dans lesquelles les résultats, donnés au chapitre B, ont été obtenus. A la suite de l'étude et des réglages effectués en 1978 et 1979, la résolution a été nettement améliorée, comme le montre la courbe marquée "Après". Au lieu de plafonner comme précédemment vers 10.000 de résolution, elle est à présent continûment croissante avec la fermeture des fentes jusqu'à la limite que l'on peut définir mécaniquement pour celles-ci, c'est-à-dire environ  $1 \mu\text{m}$ . Pour cette limite, la résolution atteint 60.000. La cause la plus probable de la limitation antérieure de cette résolution à 10.000 serait la non-coplanéité des plans médians du S.E. et de l'aimant. L'influence de la coplanéité sur la résolution est, en effet, extrêmement sensible [Mat 77].

Nous sommes, certes, loin de la résolution théorique, mais nous ne devons pas oublier que cette dernière ne tient pas compte des aberrations et que celles-ci, volontairement, ne sont pas diminuées par usage de diaphragmes, comme nous le verrons au paragraphe suivant.

#### *c - Transmission Théorique*

Nous ne parlons ici que de la transmission propre du Spectromètre de masse, c'est-à-dire du rapport T entre le nombre d'ions  $N_1$  qui sort par la fente de sortie FS et le nombre  $N_0$  de ceux qui arrivent sur la fente d'entrée F.E..



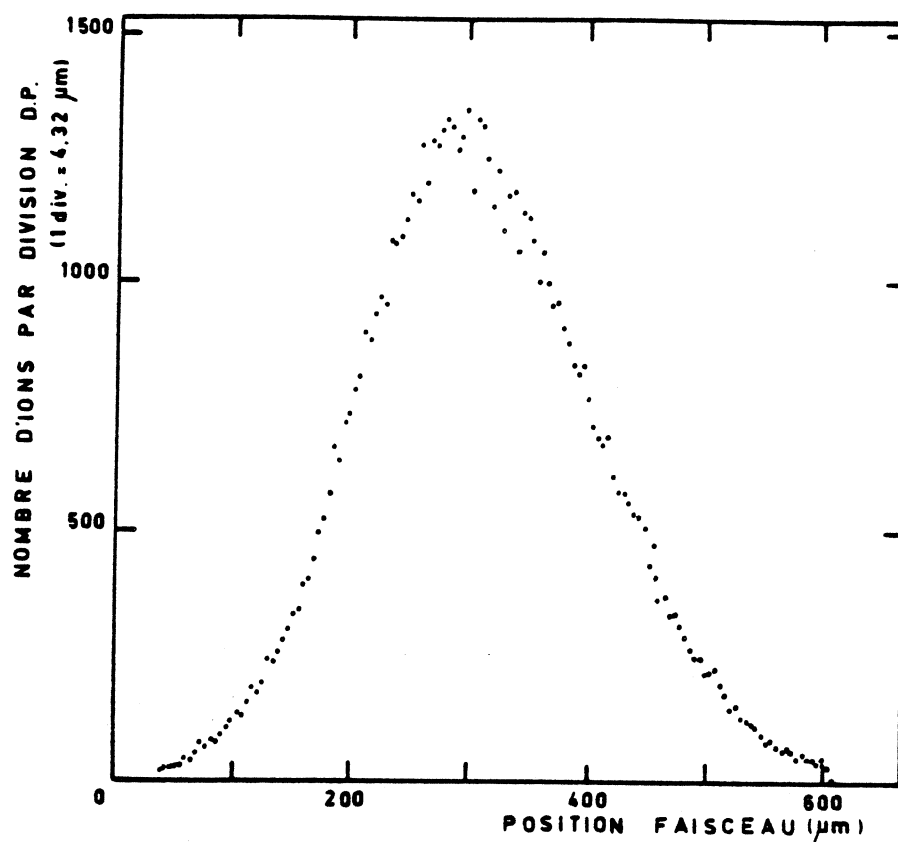


Figure 12 - Structure du faisceau observée au niveau de F.E.. La largeur de ce faisceau à mi-hauteur est de  $233\mu\text{m}$ .

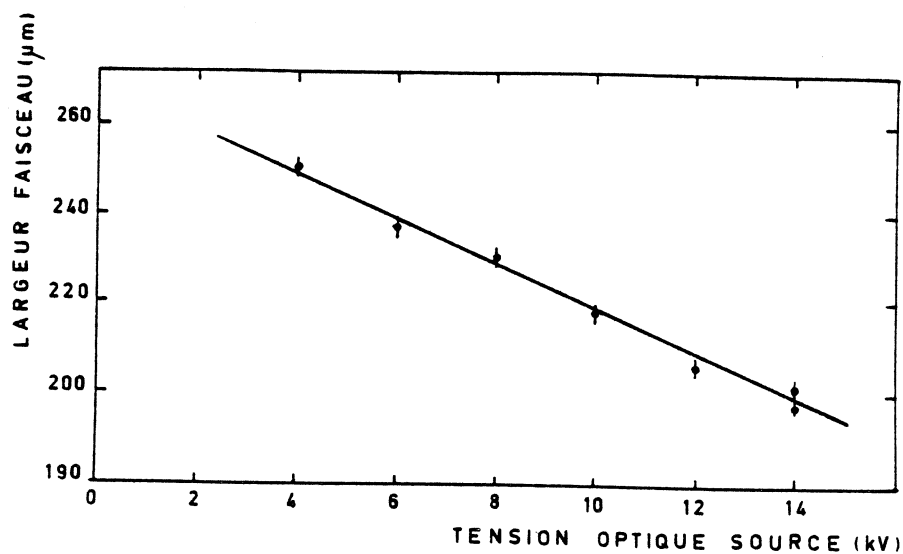


Figure 13 - Evolution de la largeur du faisceau au niveau de F.E. en fonction de la H.T. totale appliquée à la source. De 9 à 14 kV, cette largeur est diminuée de 12%.

Pour étudier des noyaux exotiques, dont la quantité est toujours limitée, la transmission doit être aussi élevée que possible. Pour cela, et a priori, tout diaphragme a été supprimé à l'intérieur du spectromètre et nous avons pu vérifier sur les photos obtenues (figures 9) que le faisceau ne touche nulle part les parois. Pour avoir le droit de réintroduire un diaphragme, ce dernier devrait être réglable et escamotable, afin que nous puissions évaluer, directement et expérimentalement, le taux d'ions perdus et le gain corrélatif de résolution. Car seul un gain en résolution peut dans une certaine mesure justifier une perte de transmission (cf. § e). Pour le moment la construction de tels diaphragmes n'étant pas envisagée, tout ion ayant passé F.E. arrive sur F.S..

Si, pour toute ouverture  $X_I$  de F.E., F.S. est ouverte à  $X_F = a X_I \approx X_I$ , alors la transmission théorique est déterminée par la proportion d'ions qui peut traverser F.E..

Pour évaluer cette dernière quantité, il nous faut déterminer la structure du faisceau d'ions donnée par l'optique au niveau de F.E.. Ceci a été réalisé en balayant le faisceau avec les demi-plaques DP1 et DP2 de l'optique devant F.E. très fortement diaphragmée (5  $\mu\text{m}$ ), les demi-plaques ayant été préalablement étalonnées (cf. A-III-2 ; p. 19). La figure 12 montre cette structure dont la largeur à mi-hauteur est de 233  $\mu\text{m}$  (dans ces 233  $\mu\text{m}$  nous avons 76 % du faisceau). La dimension à la base est d'environ 650  $\mu\text{m}$ , ce qui est corroboré par l'image obtenue avec la galette de microcanaux (cf. figure 9).

La transmission théorique ainsi calculée est représentée sur la figure 11b en fonction de l'ouverture de F.E..

Remarque : cette étude a été faite à une HT totale de 8 kV.  
Pour d'autres valeurs, la forme du faisceau est la même, mais la largeur varie, comme le montre la figure 13.

#### *d - Transmission Expérimentale*

Les mesures de la transmission relative sont reportées sur la figure 11b.

L'allure générale de la courbe est assez proche de la courbe théorique, ce qui n'a rien d'étonnant, étant donné que le faisceau n'est pas diaphragmé.

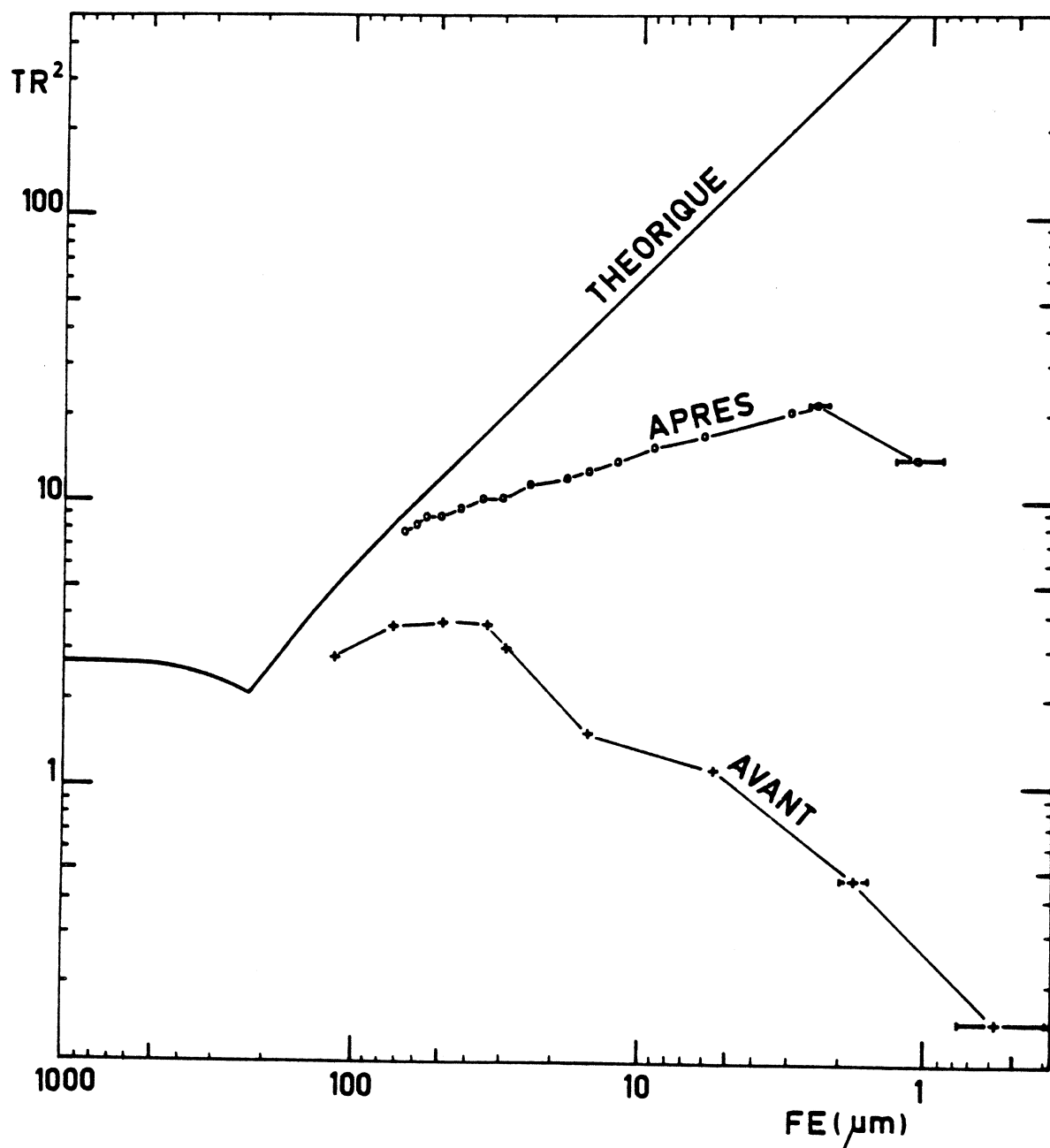


Figure 14 - Produits  $TR^2$ , expérimentaux et théorique, en fonction de la largeur de FE.

Croix : Spectromètre tel qu'il était réglé lors des mesures de masse des isotopes de Rb, Cs et Fr.

Cercles : Spectromètre après optimisation.

## e - Compromis Transmission - Résolution

Ainsi que nous l'avions dit en tête de ce premier chapitre, l'incertitude sur la mesure d'une masse M peut se décomposer ainsi :

$$\frac{dM}{M} = \frac{dM}{\Delta M} \times \frac{\Delta M}{M} \quad (A.7)$$

$\Delta M$  étant la largeur du pic obtenu par balayage du faisceau. Le premier terme  $\frac{dM}{\Delta M}$  représente, rappelons-le, la précision avec laquelle est déterminée la position du centre de gravité du pic par rapport à sa largeur  $\Delta M$  ; en première approximation et en négligeant le bruit de fond :

$$\frac{dM}{\Delta M} = k \frac{1}{\sqrt{N_1}} = k \frac{1}{\sqrt{N_0 T}}$$

k étant un facteur de proportionnalité. Le second terme de (A.7) n'est autre que l'inverse du pouvoir de résolution :

$$\frac{\Delta M}{M} = \frac{1}{R}$$

Donc :

$$\frac{dM}{M} = k' \frac{1}{R\sqrt{T}}$$

Pour minimiser cette incertitude, il nous faut donc avoir le produit  $R\sqrt{T}$ , qui est le facteur de mérite de l'appareil, le plus élevé possible. Sur la figure 14 nous avons représenté  $T_{th} R_{th}^2$  en fonction de F.E.. Si la transmission et la résolution suivaient les comportements théoriques (en particulier : absence d'aberrations qui limitent R et pas de bruit de fond) la meilleure précision de mesure serait obtenue pour des fentes F.E. et F.S. infiniment petites. Outre que, par construction (irrégularité des lames qui constituent les fentes), on ne saurait descendre en-dessous de 1 ou 2  $\mu m$ , les aberrations ont tôt fait d'écarter la résolution de sa valeur théorique (la transmission la suivant plus volontiers) ainsi qu'on le voit sur les figures 11a et b.

Dans ces conditions, et en l'absence de bruit de fond, le point optimal de fonctionnement du spectromètre se situe en deçà de 3  $\mu m$  (au delà d'une résolution  $R = 40.000$  à mi-hauteur), alors qu'auparavant il était situé à 72  $\mu m$  avec une résolution  $R = 5$  à 6000.

Le facteur de mérite  $R/\sqrt{T}$ , donc la précision des mesures, est amélioré d'un facteur 6.

Si le bruit de fond n'est pas négligeable on doit se décaler vers des résolutions d'autant plus basses que ce bruit est important.

## 6) Stabilités

### *a - Stabilité des Alimentations*

Nous souhaitons réaliser des mesures de masses avec une précision relative de 1 à  $2 \times 10^{-7}$ . Cela nécessite donc que les champs électriques et magnétiques créés aient cette même stabilité pendant la durée de la mesure, à moins qu'ils ne puissent être mesurés avec cette précision de 1 à  $2 \times 10^{-7}$ .

Durée d'une mesure : elle dépend du taux de comptage (statistique) et varie de une à trente minutes. Toutefois, les mesures à faible statistique ne permettant pas d'atteindre la précision visée ci-dessus, seules les mesures d'une durée de une à cinq minutes retiendront notre attention.

L'alimentation du déflecteur électrostatique est stabilisée à  $10^{-6}$  par jour avec un bruit de  $10^{-7*}$ . Elle sera mesurée à  $4 \times 10^{-7}$  puis à mieux que  $10^{-7}$  (voir plus loin : "Grandeurs Mesurées").

L'alimentation du champ magnétique a une stabilité annoncée par le constructeur\*\* de  $2 \times 10^{-6}$  par heure et un bruit de  $2 \times 10^{-6}$ . La stabilité exigée (1 à  $2 \times 10^{-7}$ ) sera tout de même atteinte sachant que cette alimentation charge les bobinages qui ont une importante induction.

La haute tension accélératrice n'a pas besoin d'être stabilisée à  $2 \times 10^{-7}$  grâce à la focalisation en énergie. Nous avons vu (A-IV-4) qu'il suffit d'avoir sur cette accélération une stabilité de  $4 \times 10^{-4}$ . En fait, nous utilisons une alimentation stabilisée à  $5 \times 10^{-5}$  par heure avec un bruit de 1 à  $5 \times 10^{-5***}$ .

---

\* FLUKE (réf. 3330B) 1000 volts, programmable, calibrée.

\*\* DRUSCH (réf. M519) 40 amp., 12 volts.

\*\*\* FLUKE (réf. 410B) 10 kV

L'alimentation secteur 220 volts de tous ces appareils est elle-même stabilisée.

#### *b - Stabilité Mécanique*

Les positions de F.E. et F.S. ne doivent pas non plus varier au cours de la mesure du fait de chocs ou de vibrations. Une précision de  $2 \times 10^{-7}$  au niveau de F.S. représente une stabilité en position de  $0,08 \mu\text{m}$ .

Pour éviter les chocs (coups directs, claquement de porte, courant d'air), l'espace d'expérimentation est confiné pendant la mesure, ce qui permet, en outre, une relative stabilité en température.

Afin d'éliminer les vibrations (pompes turbomoléculaires du spectromètre lui-même, des autres expériences à ISOLDE et de ISOLDE même ; air comprimé, etc...) le spectromètre est monté sur coussins d'air et isolé de sa propre pompe turbomoléculaire et de l'installation ISOLDE, à laquelle il est raccordé, par des soufflets à ondes soudées (dits encore : soufflets à coupelles).

### V - DETECTION

#### 1) Multiplicateur d'Electrons

Il s'agit d'un multiplicateur à fort gain (plus de  $10^8$  à 3500 volts)\*, comprenant 17 dynodes en Cu-Be, dont le coefficient d'émission secondaire se situe entre 2 et 3.

Chaque ion incident donne ainsi une impulsion en sortie et peut être détecté individuellement. La mesure se fait donc par comptage ([Whi 54], [Kla 66]).

---

\*

BALZERS (réf. SEV 317) première dynode :  $6 \times 18 \text{ mm}$

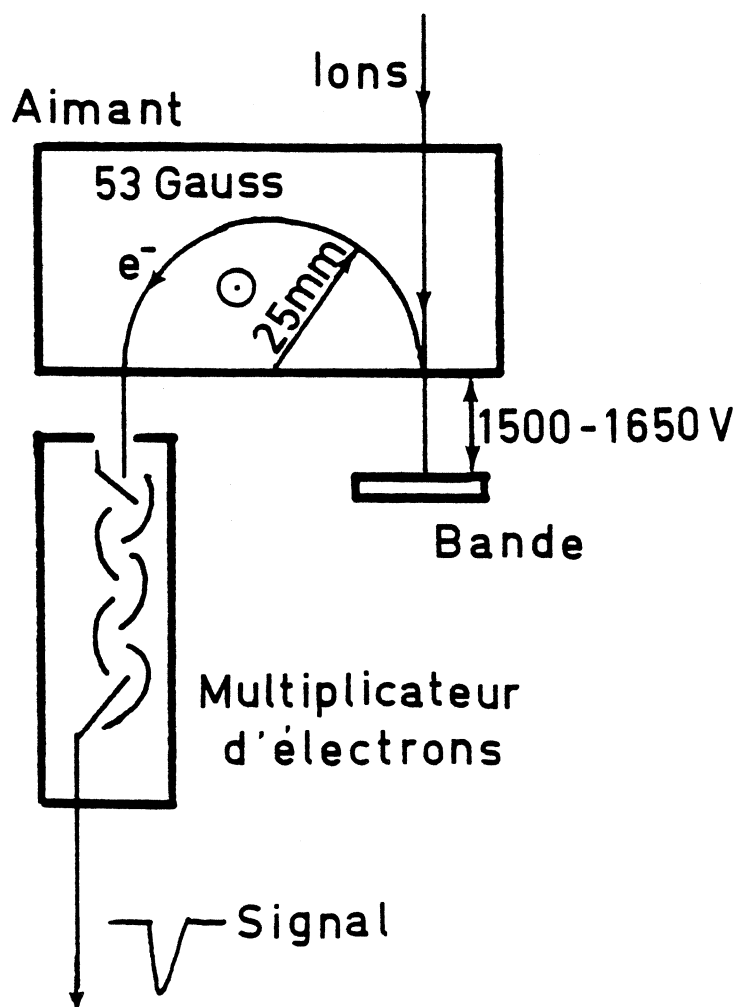
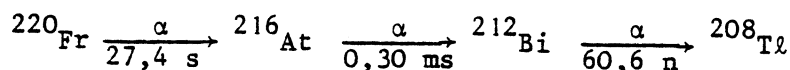


Figure 15 - Schéma du multiplicateur d'électrons à dynode mobile .  
Les ions sont collectés sur une bande de mylar aluminisé. Ils y induisent une émission d'électrons secondaires. Ces derniers sont accélérés, défléchis par un aimant à 180° et focalisés sur la première des 17 dynodes en Cu-Be du multiplicateur d'électrons. Les atomes radioactifs implantés dans la bande sont évacués aussi souvent qu'il est nécessaire, en déplaçant la bande pas à pas.

## 2) Multiplicateur à Dynode Mobile

Le problème important qui reste posé à la détection, lorsqu'on étudie des isotopes instables, est celui du bruit créé par la désintégration radioactive de ces isotopes accumulés sur la première dynode. L'avalanche produite par cette désintégration ne peut être valablement discernée de celle provoquée par l'impact d'un ion.

Ainsi par exemple, les isotopes de Rb et Cs éloignés de la vallée de stabilité se désintègrent par émission  $\beta^+$  ou  $\beta^-$ . Les isotopes de Fr, eux, donnent des chaînes de désintégrations  $\alpha$ , qui peuvent produire un nombre plus grand d' $\alpha$  que d'ions qui se sont déposés. Par exemple dans le cas du  $^{220}\text{Fr}$ , au bout de deux minutes, le bruit de fond est deux fois plus grand que le signal lui-même :



La solution qui avait été adoptée dans une première étape pour pallier ces inconvénients avait été de disposer à la sortie du spectromètre un déflecteur pouvant envoyer les ions sur l'un ou l'autre de 2 multiplicateurs montés en parallèle. Un choix judicieux de l'utilisation de chacun, en fonction de l'ion étudié et des temps de repos, permettait souvent d'améliorer la situation. Celle-ci était de toute façon désespérée dans l'étude du francium.

Nous avons vu, en effet, qu'il était nécessaire de comparer au moins deux isotopes, l'un pouvant être abondant et l'autre pas.

La solution qui a permis de résoudre ce problème de façon élégante est le multiplicateur à dynode mobile qui a fait l'objet de la thèse de 3<sup>e</sup> cycle de François Touchard [Tou 77], où l'on en trouvera une description détaillée (voir également [Tou 78]). Il s'agit, schématiquement, de rajouter un étage au multiplicateur de façon à avoir, pour première dynode, un ruban mobile. Ce ruban permet d'évacuer régulièrement l'activité qui s'y accumule. Un aimant à 180° (figure 15) permet de focaliser les électrons, émis par le ruban, sur la première dynode du multiplicateur qui est ainsi protégé du faisceau d'ions incident. Le ruban est en mylar aluminisé et le coefficient d'émission secondaire de l'aluminium reste supérieur à 2, pour une énergie de 10 keV. La transmission de ce système est de 97 %.



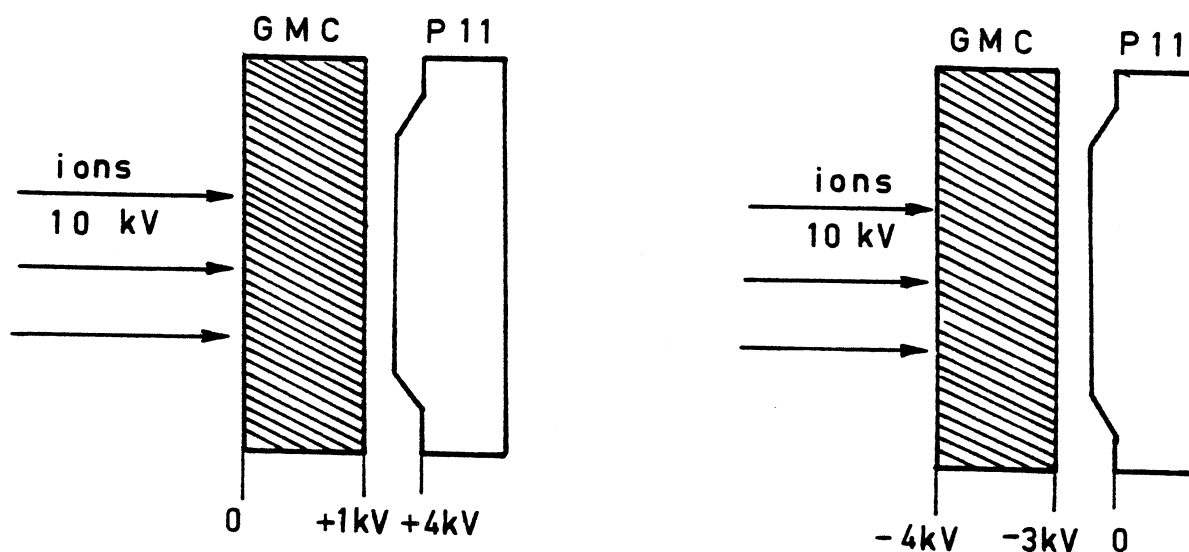


Figure 16 - Schéma de la galette de microcanaux, utilisée en intensification d'image, par couplage avec un écran phosphorescent du type P11. Deux montages possibles :

- . à gauche, face d'entrée à la masse
- . à droite, face d'entrée à -4kV, pour reproduire les mêmes conditions de tensions qu'avec un multiplicateur d'électrons, en vue d'une étude alternée du faisceau avec ces deux systèmes.

Rappelons que la galette est constituée d'un assemblage de très fins canaux de verre recouverts intérieurement d'un matériau semi-conducteur à forte émission d'électrons secondaires. Chaque canal joue le rôle de multiplicateur d'électrons, la structure en étage cédant ici la place à une structure continue: lorsqu'une différence de potentiel est appliquée aux extrémités du canal, il s'y crée un champ électrostatique axial uniforme, qui sera responsable de l'accélération des électrons secondaires. Ces électrons heurteront la paroi, provoquant une nouvelle émission, et ainsi de suite.

### 3) Galette de Micro-Canaux (G.M.C.)

Les canaux des galettes que nous avons utilisées\* ont 12  $\mu\text{m}$  de diamètre intérieur, 0,53 mm de longueur et sont espacés de 15  $\mu\text{m}$ . Le gain est de  $10^4$ . L'ensemble constitue ainsi un disque (ou galette) d'un diamètre total de 25 ou 40 mm pour les deux types de G.M.C. utilisées avec respectivement 2,6 et 6,6 millions de canaux. L'axe de la galette fait un angle de  $8^\circ$  avec les canaux.

Un faisceau tombant sur la face d'entrée de la G.M.C. est amplifié point par point pour être ensuite projeté sur un écran phosphorescent (type P11) (figure 16) réalisant une amplification d'image. Les faisceaux de relativement faible intensité ( $10^7/\text{sec}$ ) sont ainsi visualisés. Notons également que la galette pourrait être utilisée en comptage d'ions, mais la saturation serait atteinte dès  $1 \text{ à } 2 \times 10^5$  ions. Il n'est donc pas possible de visualiser et évaluer l'intensité d'un même faisceau à l'aide de la galette. Toutefois, l'emploi successif de la galette et du multiplicateur permet d'étudier la forme du faisceau, en fonction d'un paramètre, à un endroit donné, puis de mesurer les intensités relatives correspondantes (il convient évidemment de vérifier que les dimensions du faisceau lui permettent d'être pris entièrement par le multiplicateur). Telle a été notre démarche.

La galette s'est ainsi révélée être un outil précieux pour étudier le faisceau à la sortie de l'optique accélératrice c'est-à-dire à l'entrée du spectromètre de masse proprement dit, et à travers le spectromètre (figure 9 par exemple).

o o  
o

---

\* GALILEO (réf. CEMA 6025 et CEMA 6040)



## CHAPITRE B

### METHODE DE MESURE

C'est au moyen du dispositif expérimental, que nous venons de décrire, que nous avons mesuré les masses des noyaux exotiques. Nous analysons ici les principales caractéristiques de ces mesures puis nous décrirons leur réalisation.

#### I - CARACTERISTIQUES PRINCIPALES DE LA MESURE

##### 1) Mesures Relatives et Mesures Absolues

En principe, une détermination absolue de la masse d'un ion peut être obtenue à partir de l'équation (A.5). Cependant, cette détermination

---

exigeait la mesure de chacune des quantités de cette équation :  $\vec{B}$ ,  $R_e$ ,  $R_m$ ,  $d$  et  $V$  avec une précision au moins égale à celle que nous désirons obtenir pour la masse (soit  $10^{-7}$ ).

C'est pourquoi les mesures de masses réalisées avec un spectromètre de masse ont toujours été des mesures relatives [Bla 80], [Bar 80], [Dem 78]. Il en est de même ici.

## 2) Relation à Deux Masses

Le principe de la mesure relative consiste à imposer à des ions de masses différentes  $M_A$  et  $M_B$  des trajectoires identiques. Pour cela, le champ magnétique  $\vec{B}$  est maintenu constant et nous recherchons les potentiels électriques  $V_A$  et  $V_B$  qui satisfont aux conditions de cette identité (cf. A-IV-2). Nous avons alors, (éq. A.6) :

$$M_A V_A = M_B V_B \quad \text{avec} \quad \frac{V_A}{V_B} = \frac{U_A}{U_B} \quad (\text{B.1})$$

En fait, il est bien connu que dans les mesures de masses par spectrométrie de masse, s'introduisent des erreurs systématiques. La relation ci-dessus, appliquée à des masses connues  $M_A$  et  $M_B$ , n'est satisfaite que si l'on prend en compte, d'une manière ou d'une autre, une fonction d'appareil.

Des expériences antérieures ([Rig 72] ; p.55) ont montré qu'une telle fonction peut être l'addition d'une quantité  $\delta$  à  $V$  ; la relation (B.1) devient alors :

$$M_A (V_A + \delta) = M_B (V_B + \delta) \quad (\text{B.2})$$

Tout se passe comme si les ions  $M_A$  ne "voyaient" pas réellement le potentiel mesuré  $V_A$  mais un potentiel  $V_A + \delta$ ,  $\delta$  étant une quantité relativement faible (quelques centièmes de volts) mais non négligeable dans des mesures de haute précision. Les interprétations physiques de  $\delta$  peuvent être diverses et nous ne nous lancerons pas ici dans des spéculations sur son origine, mais nous citerons tout de même la préférée de l'auteur en ce moment : il pourrait s'agir de légers dépôts, dûs par exemple au faisceau sur les plaques du déflecteur électrostatique (S.E.) et qui modifieraient la tension réelle exis-

tant dans une zone donnée du S.E. ; mais il pourrait aussi bien s'agir d'un décalage de zéro dans la mesure de la tension ou d'une très légère chute de tension dans un contact... .

L'hypothèse de travail, que l'expérience vérifiera lors de la mesure de masses connues, est que cette quantité  $\delta$  est la même pour des ions différents, du moins dans un certain intervalle de temps. La détermination de  $\delta$  à partir de deux masses connues (nous dirons : la calibration de la mesure) sera effectuée régulièrement pour tenir compte des fluctuations possibles de cette fonction d'appareil avec le temps. Dans [Rig 72] et [Kla 73], chaque mesure de masse inconnue était précédée et suivie d'une calibration. Par la suite [Thi 75], l'utilisation de trois masses permet à chaque mesure d'être autocalibrée.

### 3) Relation à Trois Masses : Autocalibration

Nous faisons décrire des trajectoires identiques aux ions de trois isotopes A, B et C de masses  $M_A$  (inconnue),  $M_B$ ,  $M_C$  (connues) par exemple pour les trois tensions  $V_A$ ,  $V_B$  et  $V_C$ . Nous avons ainsi les deux équations :

$$M_A(V_A + \delta) = M_B(V_B + \delta) = M_C(V_C + \delta) \quad (B.3)$$

d'où nous tirons en éliminant  $\delta$  :

$$M_A = \frac{M_B M_C (V_C - V_B)}{(M_B - M_C)V_A + M_C V_C - M_B V_B} \quad (B.4)$$

Lors des mesures "test" (3 masses connues) qui servent à vérifier la validité de nos hypothèses sur la constance de  $\delta$ , nous pourrions calculer  $\delta$  dans la 1<sup>ère</sup> puis la 2<sup>e</sup> équation de (B.3) :

$$\delta_{AB} = \frac{M_B V_B - M_A V_A}{M_A - M_B} \quad \delta_{BC} = \frac{M_C V_C - M_B V_B}{M_B - M_A} \quad (B.5)$$

ainsi que leur incertitude et comparer les deux valeurs obtenues. Nous préférons, et c'est strictement équivalent, calculer la masse  $M_A$  par exemple

ainsi que son incertitude et la comparer à la valeur connue. C'est ce que nous ferons plus loin (C-IV-2c et 3f : "Redétermination de Masses Connues" ; p. 80 et 95).

## II - VOCABULAIRE - DEMARCHE EXPERIMENTALE

Avant de décrire la façon dont est réalisée une mesure, il convient de préciser le vocabulaire que nous emploierons, en suivant la progression expérimentale.

Ayant choisi trois isotopes A, B et C qui définissent une SEQUENCE (A,B,C), nous fixons les tensions  $V_A$ ,  $V_B$  et  $V_C$  du S.E. dans des rapports correspondant, à peu près, aux numéros atomiques A, B et C. Les tensions  $U_A$ ,  $U_B$  et  $U_C$  de la HT source sont déterminées par le rapport  $k$  défini précédemment à  $V_A$ ,  $V_B$  et  $V_C$ . Une MESURE débute. Pour cela, les différents potentiels électriques vont "SAUTER" de A à B puis de B à C en séjournant plus ou moins longtemps sur chaque isotope, décrivant ainsi plusieurs CYCLES jusqu'à ce que l'accumulation statistique soit jugée satisfaisante. Les cycles peuvent être simples (A-B-C) ou plus complexes\*. La mesure terminée, les données stockées dans un compteur multiéchelle sont transférées vers un ordinateur où elles seront enregistrées et exploitées. Le multiéchelle est remis à zéro et une nouvelle mesure peut commencer. En général nous effectuons 7 ou 8 mesures différentes de la même séquence (A,B,C), définissant ainsi une SERIE de MESURES. Une nouvelle séquence (A',B',C') étant choisie, on recommence une nouvelle série de mesures et ainsi de suite jusqu'à épuisement des séquences possibles au vu de l'intensité des faisceaux et des sauts permis (jusqu'à 10 % en masse). L'ensemble des séries de mesures ainsi réalisées constitue un TISSU de MESURES (par exemple : tissu des "Rb légers", des "Rb lourds", etc...).

---

\*En effet, pour s'affranchir des dérives lentes du champ magnétique pendant la mesure, une commutation judicieuse entre les trois masses de la séquence (A,B,C) peut être adoptée : (A-B-C-A) ou mieux encore (A-B-C-B-A).

### III - REALISATION D'UNE MESURE

Nous venons de voir que les mesures de masses doivent avoir deux caractéristiques essentielles : elles doivent être relatives et autocalibrées. Nous en étudions ici la réalisation, qui implique :

- i) un balayage du faisceau, synchronisé avec le système de détection, afin de déterminer l'axe du faisceau à la sortie du spectromètre ;
- ii) une évaluation très précise, lorsque cet axe est déterminé, des valeurs relatives des tensions déflextrices  $V_A$ ,  $V_B$ ,  $V_C$  appliquées au faisceau, (tout en nous assurant que les tensions accélératrices  $U_A$ ,  $U_B$  et  $U_C$  sont dans des rapports corrects avec les tensions précédentes).

#### 1) Balayage

##### *a - Principe du balayage*

#### Historique

Historiquement, les mesures de masses ont d'abord été faites [Nie 51], pour des doublets étroits ("narrow doublets") en considérant la distance séparant deux flancs correspondants de deux pics (figure 17a) obtenus lors d'un balayage en tension à l'aide d'un potentiomètre soigneusement calibré.

La méthode a été ensuite améliorée [Gie 54], [Qui 56] et [Bar 63] en observant sur un oscilloscope en synchronisation avec un générateur de balayage rapide (30 cycles par seconde) les pics correspondant alternativement à une masse  $M_A$  puis à une masse  $M_B$ , tout en ajustant les tensions  $V_A$  et  $V_B$  pour obtenir une superposition visuelle des deux pics (figure 17b). Cette méthode est dite d'"ajustement visuel des pics" (ou "visual peak-matching" en anglais), et, bien qu'en net progrès par rapport à la précé-



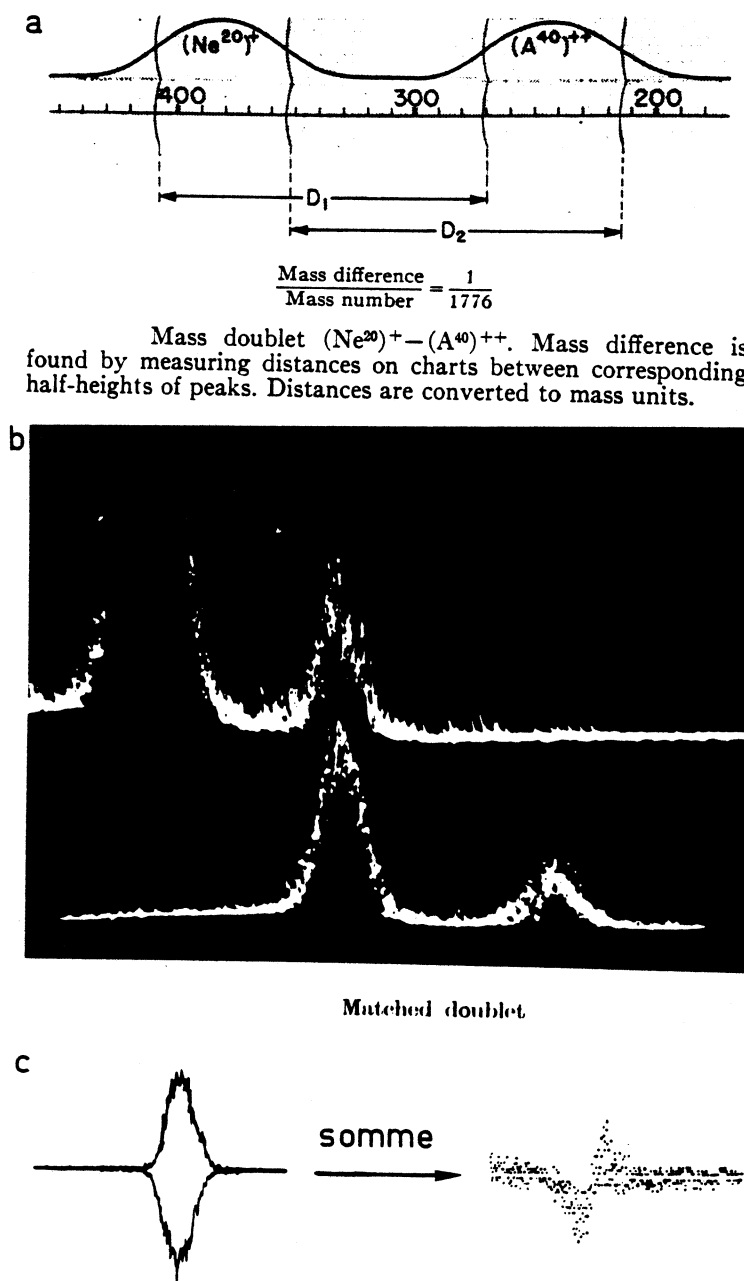


Figure 17 - Trois méthodes de mesure de masses par spectrométrie de masse :

- a - Méthode de A.O. Nier [Nie 51]
- b - Méthode d'"ajustement visuel des pics" ("visual peak-matching") [Bar 63]
- c - Méthode dite du "peak-mismatch" : les deux pics sont mis en opposition et les amplitudes sont ajustées. Une somme se traduisant par une forme en "S" est caractéristique d'une non-superposition. Ici le décalage représenté est de 1,5% de la largeur des pics [Ben 66].

dente, elle nécessite des faisceaux intenses\* et donne une précision toute relative, sur la bonne superposition des deux pics : effet de mémoire de l'oscilloscope, évaluation visuelle de l'expérimentateur,...

Pour pallier ces inconvénients, une amélioration notable [Ben 66] et [Mac 66] a été obtenue par l'utilisation d'un oscilloscope à mémoire digitale, qui permet l'accumulation de données et l'évaluation de la bonne superposition des pics par leur différence (peak mismatch) : la précision est alors accrue d'un ordre de grandeur, et la superposition ainsi réalisée est meilleure que 0,25 % de la largeur des pics. La figure 17c montre le signal résiduel obtenu pour un décalage de 1,5 %.

Dans les mesures, en ligne, d'isotopes instables, les deux dernières de ces trois méthodes ne peuvent être retenues, car elles conduisent au rejet d'un grand nombre de mesures, avant d'accéder à la "bonne" mesure définie par la superposition des pics. La seconde présente un désavantage supplémentaire en ce qui concerne les intensités des faisceaux : nous désirons déterminer la position d'un pic relative à sa largeur à  $10^{-3}$ , il est alors nécessaire d'avoir  $3 \times 10^8$  ions par seconde à la sortie du spectromètre. La solution adoptée alors [Rig 72] fait la synthèse, en quelque sorte, entre la première et la troisième méthodes, puisqu'elle combine les avantages de la troisième (accumulation des données et traitement par ordinateur) avec la calibration du décalage des deux pics, tirant ainsi une information de chaque mesure.

#### Balayage par la Tension, Balayage par le Champ

Chaque fois que l'on peut se dispenser d'une calibration de la fonction de balayage, comme c'est le cas dans les 2<sup>e</sup> et 3<sup>e</sup> méthodes, le balayage du faisceau peut être réalisé indifféremment en modulant la tension électrique ou le champ magnétique : le groupe de Minneapolis préférant le balayage par le champ [Gie 54], celui de Hamilton-Winnipeg [Bar 63] le balayage par la tension.

---

\*Pendant la durée d'un balayage (1/30<sup>ème</sup> de seconde),  $10^5$  ions doivent être obtenus afin que la superposition soit déterminée à 1 % de la largeur des pics. Soit un taux minimal de  $3 \times 10^6$  ions/sec en sortie du spectromètre

Par contre, dès qu'une calibration est nécessaire, le choix du balayage par la tension est préférable de par sa linéarité en fonction de la masse (voir formules A.4 et A.5).

C'est le cas ici. Pour ce faire nous utilisons un générateur de fonction (Hewlett Packard, 3300 A) délivrant une tension triangulaire avec une précision meilleure que  $10^{-2}$  et une stabilité de  $3 \times 10^{-3}$  sur 24 heures. Cette tension est ajoutée à celle appliquée au Secteur Electrostatique.

*Remarque : cette stabilité de  $3 \times 10^{-3}$  peut être considérée comme suffisante. En effet, la tension correctrice à ajouter à la tension principale du S.E. (690 volts) est généralement inférieure à 20 mV. Le rapport est de  $3 \times 10^{-5}$ , ce qui donne une incertitude totale relative, due à la tension correctrice, inférieure à  $10^{-7}$ .*

Ce balayage donne, à la détection qui lui est synchronisée, une distribution du faisceau en principe trapézoïdale dont le centre détermine l'instant, donc l'incrément de tension, pour lequel ce faisceau est centré sur F.S.. Aussi convient-il de calibrer soigneusement la tension de modulation de balayage (cf. B-III-3c : "Calibration" ; p. 54).

#### *b - Cas Particulier de la Tension Accélératrice*

En principe (cf. A-IV-2), la HT source devrait être modulée en synchronisation avec la tension S.E. et dans le même rapport. Cependant, étant donné les propriétés de focalisation en énergie de l'appareil (cf. A-IV-4 ; p. 24) cette seconde modulation aura un effet extrêmement atténué sur la position des pics. Nous pourrions nous en affranchir, pour simplifier le montage expérimental, à condition d'en tenir compte lors de la calibration de la modulation de balayage.

## 2) Grandeurs Mesurées

### a - Tension Accélératrice

Nous en mesurons une fraction (1 volt pour 10 kV), au pied de chaîne d'un pont diviseur, à l'aide d'un voltmètre digital (DVM) à 5 chiffres significatifs. Cette valeur est notée manuellement en cours d'expérience et on vérifie que les tensions mesurées  $U_A$ ,  $U_B$  et  $U_C$  ont entre elles les mêmes rapports que les tensions déflectrices du S.E.  $V_A^0$ ,  $V_B^0$  et  $V_C^0$  :

$$\frac{U_A}{U_B} = \frac{V_A^0}{V_B^0} \quad \text{et} \quad \frac{U_A}{U_C} = \frac{V_A^0}{V_C^0} \quad \text{avec toujours} \quad \frac{U_A}{V_A^0} = k$$

avec une précision meilleure que  $4 \times 10^{-5}$  (cf. A-IV-4) pour une mesure de masse à  $2 \times 10^{-7}$ .

### b - Tension Déflectrice du Secteur Electrostatique

#### Première Etape

Dans cette étape qui comprend la mise au point et une première expérience de mesure des masses d'isotopes déficients en neutrons du Rb, la tension déflectrice a été mesurée directement en pied de chaîne sur une voie à l'aide d'un DVM à 6 chiffres significatifs (Hewlett Packard 3462 A).

L'incertitude sur une telle mesure est due à l'arrondissement du dernier chiffre par le DVM. Nous l'appelons "erreur volt" et allons essayer de l'évaluer. Supposons que l'arrondissement s'opère de façon parfaite, une valeur lue, par exemple 690,023 volts, peut correspondre à n'importe quelle valeur réelle comprise entre 690,0225 et 690,0235, avec des probabilités égales. Elle est donc représentée par une distribution rectangulaire de probabilité, de largeur  $\pm 0,5$  mV. L'écart-type d'une telle distribution, qui représente l'incertitude sur cette valeur, est de 0,29 mV. La précision relative de chaque mesure est donc de  $4 \times 10^{-7}$  pour une tension nominale de 690 volts.

Une tension  $V_A^0$  sera la moyenne de plusieurs mesures et son incertitude ne sera pas la même selon que ces mesures sont corrélées (par exemple, tension constante) ou indépendantes (si la tension dérive suffisamment vite : par exemple, plus de 0,5 mV entre 2 mesures de tension). Il suffira de tenir compte de la vitesse de dérive de la tension, de la durée d'un cycle, du nombre de mesures DVM pendant un cycle et du nombre de ceux-ci pendant la mesure de masse considérée pour évaluer l'"erreur volt" sur  $V_A^0$ ,  $V_B^0$  et  $V_C^0$ .

### Seconde étape

Etant donné que la précision statistique que nous pouvons tirer des mesures semble bien meilleure que  $10^{-6}$  et que le facteur limitatif le plus évident semble être l'"erreur volt", nous avons essayé, suivant les conseils de Gerhardt HUBER, d'améliorer cette dernière.

Pour cela, la tension à mesurer est ramenée à une valeur comprise entre 10 et 11 volts, par un pont de résistances thermostatées, et comparée à une référence de tension de 10 volts de grande stabilité\*. La différence entre ces deux valeurs, inférieure à 1 volt est alors mesurée par le même DVM à 6 chiffres, donnant ainsi une mesure à 7 chiffres significatifs. L'"erreur volt" est ainsi réduite d'un ordre de grandeur, et devient négligeable.

### Stockage de la Mesure S.E.

La mesure de la tension S.E., dans la première ou la seconde étape, est répétée constamment pendant toute la durée d'acquisition sur une masse donnée (d'une dizaine de secondes à quelques minutes). Le DVM effectue sa mesure pendant une seconde et s'arrête pendant une autre seconde durant laquelle l'information est transférée vers un ordinateur (PDP9 jusqu'ici, Pdp11, à l'avenir) qui l'enregistre et fait la moyenne avec les valeurs précédentes en évaluant la dispersion de ces différentes valeurs ([Rig 72], p. 24).

---

\* FLUKE 731 B. Stabilité annoncée : meilleure que  $10^{-6}$   
Stabilité mesurée : quelques  $10^{-7}$

Notons ici l'existence d'un test de sécurité, dans l'ordinateur, destiné à éviter qu'une erreur d'étiquetage ne fausse totalement la mesure. Ce test rejette toute mesure qui s'écarte de la moyenne déjà existante de plus d'une certaine quantité définissant une fenêtre d'acceptation. Cette fenêtre est fixée à  $\pm 30 \mu\text{volts}$ , d'où une fluctuation tolérée de  $\pm 3 \times 10^{-6}$  dans la seconde étape. Nous verrons, en étudiant les critères d'acceptation (C-II-1d ; p.65) que ce test un peu trop sévère a pu gâcher quelques mesures par son excessive sévérité.

Nous devons faire remarquer, à présent, que des fluctuations de tension S.E. peuvent être acceptées sans nuire à la qualité de la mesure. Nous mesurons, en effet, la tension réellement appliquée à l'instant précis où nous observons le faisceau. Pendant la durée de la mesure, et à chaque cycle, les valeurs fluctuantes de la tension avec le temps et les positions corrélativement fluctuantes du faisceau seront donc moyennées simultanément. Si la production est constante pendant la durée de la mesure, ces deux moyennes se correspondent.

#### *c - Champ Magnétique*

Le champ magnétique est supposé rester constant en cours de mesure et est réglé sur la masse  $M_A$ , la plus légère dans la séquence (A,B,C) avec les tensions  $U_A$  et  $V_A^0$  nominales. La mesure du champ magnétique permettra d'une part de surveiller sa stabilité et d'autre part de retrouver aisément une autre masse  $M'_A$ , lors d'un changement de séquence.

Il est mesuré à l'aide d'une sonde RMN, la lecture se faisant directement en gauss.

#### *d - Comptage*

Les taux de comptage correspondant aux isotopes A, B et C sont stockés dans trois zones distinctes d'un multiéchelle (DIDAC 4000) en synchronisation avec le générateur de balayage.

Lorsque l'information accumulée est jugée suffisante, la mesure peut être arrêtée et le contenu du multiéchelle transféré vers l'ordinateur PDP.

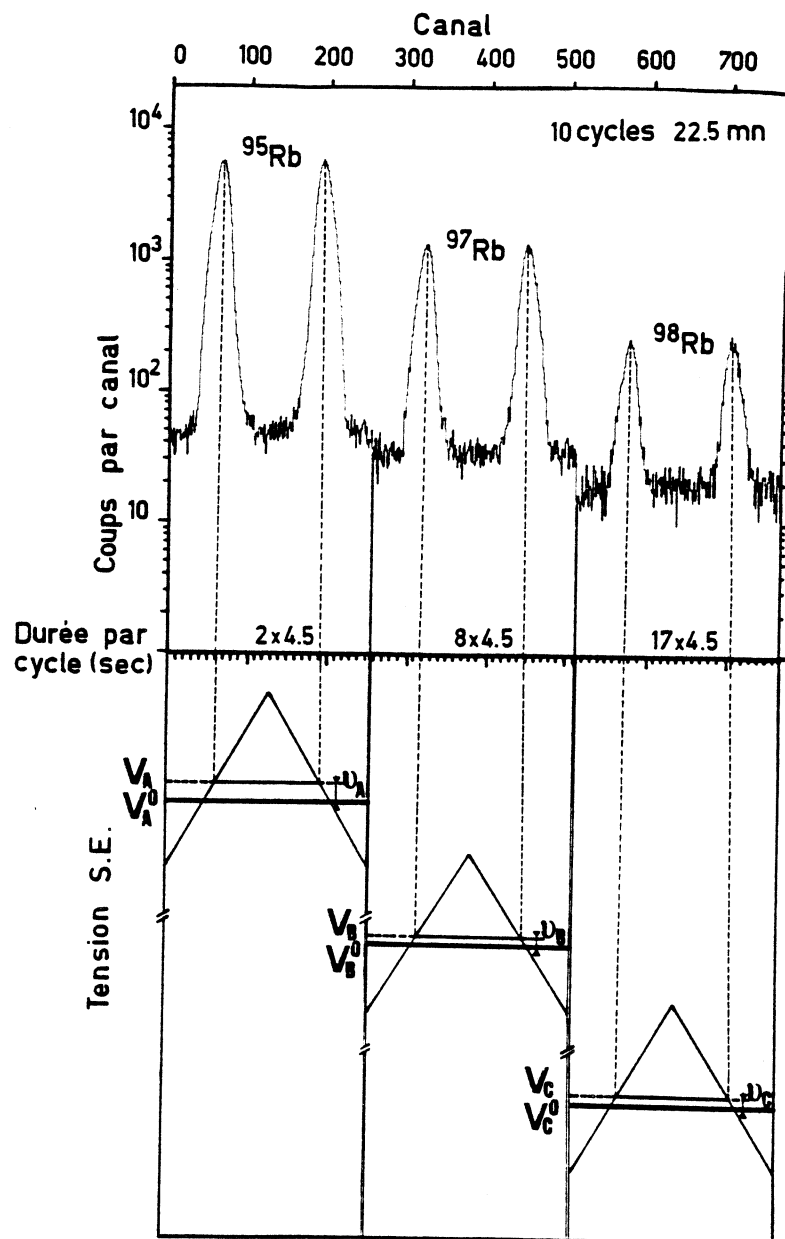


Figure 18 - Spectre du multiéchelle correspondant à la séquence (95,97,98) des isotopes de Rb (série N°34 du tissu "Rb lourds"). Chaque masse est stockée dans une section différente du multi-échelle. Les tensions modulées du S.E. qui correspondent à ces 3 masses sont représentées dans la partie inférieure. Ce schéma montre clairement le principe de l'évaluation des tensions correctrices  $v_A$ ,  $v_B$  et  $v_C$ .

Ces données sont tout à la fois exploitées sur le champ et enregistrées sur bande pour les traitements ultérieurs.

L'exploitation immédiate permet de recentrer les pics à la mesure suivante, de déterminer la masse mesurée avec sa précision statistique et aussi de se rendre compte par la forme des pics, leur largeur ou la présence de "burst" indésirables, de diverses perturbations qui auraient pu gâcher la mesure.

### 3) Tension Totale vue par chaque Ion

Avec une modulation triangulaire, nous voyons apparaître deux fois le même pic de façon symétrique [Rig 72]. La figure 18 montre le résultat d'une mesure telle qu'enregistrée sur le DIDAC : pour chaque isotope A, B et C nous obtenons une paire de pics dont la position exacte déterminée sur ordinateur PDP permettra d'évaluer les tensions correctrices  $v_A$ ,  $v_B$  et  $v_C$ .

#### a - Centre de Gravité d'un Pic

Chaque pic peut être considéré comme une densité de probabilité liée à la variable aléatoire  $y_i - b_i$  ( $y_i$  et  $b_i$  étant le contenu et le bruit de fond du canal  $x_i$ ). L'espérance mathématique (valeur moyenne) de cette variable aléatoire représente le centre de gravité de ce pic (c'est le "MEAN" défini dans [Rig 72] et [Thi 75]) :

$$M = \frac{\sum_i x_i (y_i - b_i)}{\sum_i (y_i - b_i)} \quad (B.6)$$

Notons dès à présent que le moment d'ordre 2 par rapport à M de cette variable aléatoire définit la variance  $v$ , dont la racine carrée est l'écart-type  $\ell$ .  $\ell$  représente la largeur du pic :

$$v = \ell^2 = \frac{\sum_i (x_i - M)^2 (y_i - b_i)}{\sum_i (y_i - b_i)} \quad (B.7)$$



L'incertitude sur "MEAN" et sur l'écart-type  $\sigma$  est évaluée dans l'appendice 3.

#### *b - Tension Correctrice*

La modulation triangulaire (figure 18) est symétrique (à mieux que  $10^{-2}$ ). Une tension correctrice nulle est obtenue pour un écartement entre les 2 pics (aller et retour) correspondant à la moitié de la durée du cycle, soit  $1/2vt_{ch}$ ,  $v$  étant la fréquence de balayage (environ 40 Hertz), et  $t_{ch}$  le temps par canal (100  $\mu$ s/canal) (on trouve pour  $1/2vt_{ch}$  environ 125 canaux).

Nous évaluons donc la tension correctrice en comparant la distance séparant la paire de pics ( $A_2 - A_1$ ,  $B_2 - B_1$  ou  $C_2 - C_1$ ) avec la distance  $1/2vt_{ch}$  [Thi 75].  $v_{ch}$  étant le nombre de volts par canal, cette différence peut être exprimée en volts :

$$v_A = \frac{1}{2} v_{ch} \left[ \frac{1}{2vt_{ch}} - (A_2 - A_1) \right] \quad (B.8)$$

$A_1$  et  $A_2$  étant les centres de gravité (MEAN) du 1<sup>er</sup> et du 2<sup>e</sup> pic de la paire correspondant à la masse A. On a des expressions analogues pour  $v_B$  et  $v_C$ .

#### *c - Calibration de la Modulation de Balayage*

Si on module la HT source, en synchronisation et proportionnellement à la tension S.E., la calibration en canaux de la tension de balayage est déterminée par la pente de la fonction de modulation du S.E. :  $v_{ch_{réel}}$ .

Si l'on ne module pas la HT source, ceci devrait rester vrai à la condition que la focalisation en énergie soit absolue. En fait (figure 10) ce n'est pas le cas, et la variation du rapport  $U/V$  entraîne un déplacement supplémentaire des pics. Il en résulte une tension par canal apparente,  $v_{ch_{app}}$ , que nous évaluons rigoureusement à l'appendice 4. Un raisonnement plus simple permet cependant d'arriver au même résultat : il suffit d'adapter, lors de la calibration, une démarche en tout point identique au comportement réel du spectromètre pendant la mesure. Pour cela, nous ne balayons pas la HT source et nous fixons sa valeur, pour chaque point de la calibration, dans le rapport  $k$  ( $k = \frac{2d}{R_e}$ , cf. éq. A.4) à la tension moyenne du S.E..

La quantité  $v_{ch\_app}$  est (cf. Appendice 4) fonction de  $\frac{\partial V}{\partial U}$ , et varie donc, en toute rigueur, avec U. Cependant, lors des expériences dont nous rapportons les résultats ici, l'appareil n'étant pas réglé au mieux de ses possibilités, le point de fonctionnement était en B sur la courbe  $V = f(U)$  (figure 10). Au voisinage de ce point,  $\frac{\partial V}{\partial U}$  est à peu près constant, et donc  $v_{ch\_app}$  aussi, sur toute l'amplitude de la modulation.

#### d - Recentrage

L'incertitude sur les tensions correctrices  $v_A$ ,  $v_B$  ou  $v_C$  (éq. B.8) sera d'autant plus faible que les pics seront mieux centrés. Pour cela, le programme d'exploitation a été modifié. Les quantités  $v_A$ ,  $v_B$  et  $v_C$ , de la première mesure d'une série sont rapidement évaluées pendant la seconde mesure pour permettre de corriger les tensions de sorte que les mesures qui suivent soient réalisées avec des pics presque parfaitement centrés. L'effet de ce recentrage est visible sur les résultats (tableau 6 du chapitre suivant).

Par cette démarche, nous nous rapprochons donc de la méthode du "peak-mismatch" (cf. B-III-1a) tout en supprimant les inconvénients (rejets des mesures où il n'y a pas superposition).

#### e - Tension Totale

Finalement, la tension totale vue par l'ion de masse A, lorsqu'il passe à travers FS est :

$$V_A = V_A^0 + \frac{1}{2} \left[ \frac{1}{2v_{t\_ch}} - (A_2 - A_1) \right] v_{ch} \quad (B.9)$$

De même pour  $V_B$  et  $V_C$ .

#### 4) Calcul de l'Incertitude Expérimentale

L'incertitude expérimentale totale est évaluée ici, dans le cas où  $M_A$  est la masse à déterminer.

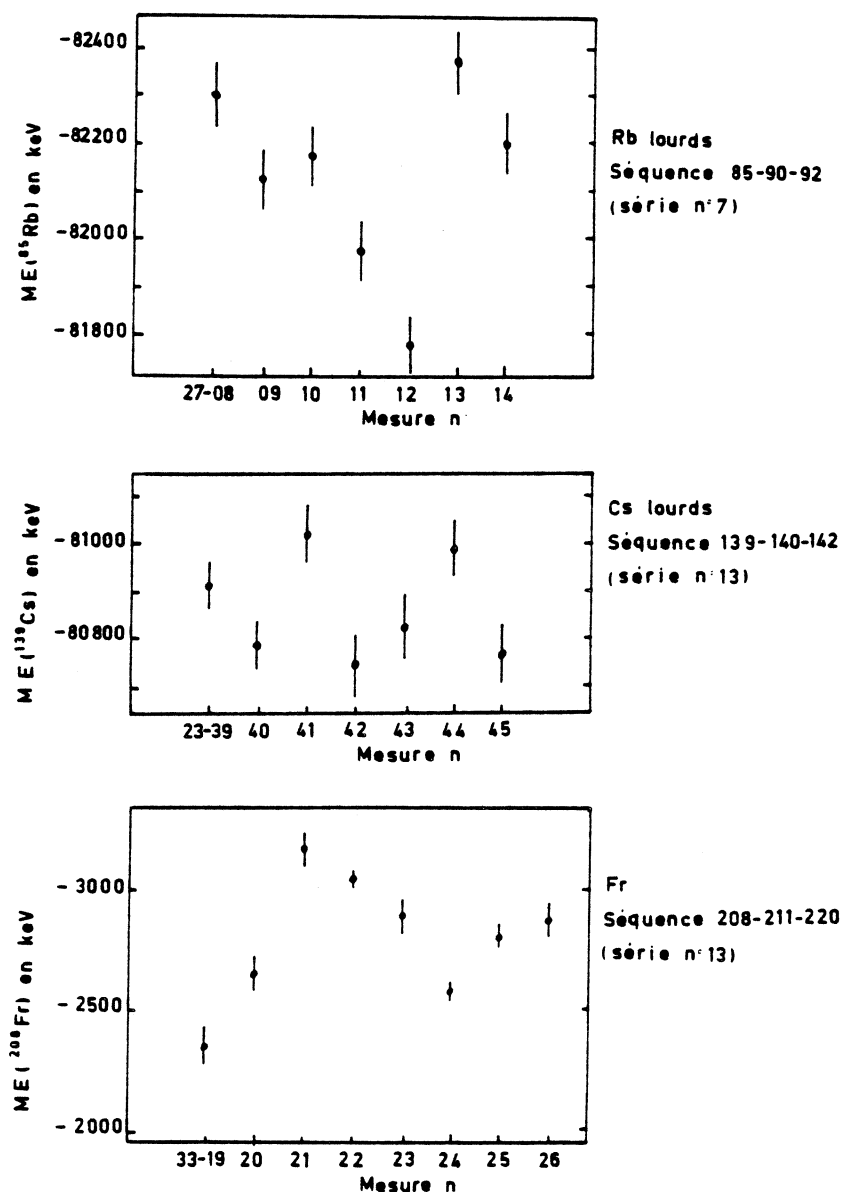


Figure 19 - Mise en évidence de l'incertitude limite. Ces trois exemples, pris respectivement pour chacun des trois éléments Rb, Cs et Fr, donnent des résultats de mesures de masses qui atteignent des précisions statistiques de  $7 \times 10^{-8}$ ,  $8 \times 10^{-8}$  et  $5 \times 10^{-8}$ . La grande dispersion des résultats traduit l'existence d'une "incertitude limite". Si on rajoutait quadratiquement une incertitude de  $2 \times 10^{-7}$  à chacun des résultats, leur distribution deviendrait compatible avec les nouvelles incertitudes totales.

L'expression (B.4) donne  $M_A$  en fonction des masses de référence  $M_B$  et  $M_C$  et des quantités mesurées  $V_A$ ,  $V_B$  et  $V_C$  :

$$M_A = \frac{M_B M_C (V_C - V_B)}{(M_B - M_C) V_A + M_C V_C - M_B V_B} \quad (B.4)$$

avec pour  $V_A$ ,  $V_B$  et  $V_C$ , l'expression donnée au paragraphe précédent (éq. B.9).

L'incertitude sur  $M_A$  (voir appendice 3-B) comprend des termes en  $dM_B$  et  $dM_C$  qui représentent les incertitudes dues aux masses de référence  $\sigma_{M_B}$  et  $\sigma_{M_C}$  et des termes en  $dV_A$ ,  $dV_B$  et  $dV_C$ . Ces derniers comprennent des termes du type  $dV_A^0$  que nous avons appelé l'"erreur volt"  $\sigma_{\text{volt}}$  (cf. B-III-2b ; p. 49) ; des termes en  $dA_1$ ,  $dA_2$ ... représentant l'"erreur statistique"  $\sigma_{\text{stat}}$  sur la position des pics  $A_1$ ,  $A_2$ ,... (cf. appendice 3-A) ; des termes en  $dv_{\text{ch}}$  qui donnent l'incertitude sur le centrage  $\sigma_{v_{\text{ch}}}$  ; et des termes en  $dv$  et  $dt_{\text{ch}}$  qui donnent des expressions identiquement nulles.

Nous appellerons "incertitude expérimentale sur une mesure", la somme quadratique

$$\sigma_A^2 = \sigma_{\text{volt}}^2 + \sigma_{\text{stat}}^2 + \sigma_{v_{\text{ch}}}^2 \quad (B.10)$$

Seule l'incertitude due aux masses de référence n'est pas prise en compte ici. Nous lui réservons en effet, un traitement particulier, dû à la forte corrélation qui apparaîtra lorsque nous voudrions combiner les résultats de plusieurs séries de mesures.

### *Incertainitude limite*

Notons dès à présent qu'il nous faut également tenir compte de la limite de l'appareillage dans son ensemble, en stabilité des alimentations et de la mécanique. Cette stabilité marque une limite en deçà de laquelle l'incertitude expérimentale ne peut descendre. L'estimation de cette limite, à partir de chaque paramètre pouvant intervenir, est difficile à faire. Nous savons d'après les caractéristiques générales décrites plus haut qu'elle doit se situer vers quelque  $10^{-7}$ . Elle peut néanmoins être estimée empiri-

quement lorsque nous disposons de résultats ayant une incertitude expérimentale bien plus faible que cette limite (figure 19) : la dispersion entre les résultats des différentes mesures au sein d'une même série de mesures, donne immédiatement l'incertitude due à la stabilité.

Cette incertitude limite agissant, a priori, indépendamment et en quantité égale sur chaque voie A, B ou C a un comportement semblable à celui de l'"erreur volt" et peut donc être exprimée par une relation analogue à celle donnant  $\sigma_{\text{volt}}$  (Ap3.11) à l'appendice 3 :

$$\sigma_{\text{lim}} = \frac{\sqrt{(M_B - M_A)^2 + (M_C - M_B)^2 + (M_A - M_C)^2}}{M_C - M_B} \times \sigma(M) \quad (\text{B.11})$$

avec  $\frac{\sigma(M)}{M} = p$  la précision relative limite de l'appareil

Nous trouvons ainsi, par essais successifs, une incertitude relative  $p = 6 \times 10^{-7}$  à ajouter quadratiquement à l'incertitude expérimentale sur chaque mesure, ou bien une incertitude  $p = 2 \times 10^{-7}$  à ajouter à la moyenne des 7 ou 8 mesures individuelles constituant la série de mesures. Nous optons pour cette seconde possibilité et commenterons ce choix plus loin (cf. C-III-1 ; p. 67).

o o  
o

## CHAPITRE C

### RESULTATS EXPERIMENTAUX

Après avoir précisé le mode de présentation des résultats, nous décrirons la technique de dépouillement et nous définirons les critères d'acceptation d'une mesure. La moyenne d'une série de mesures sera alors évaluée et nous en donnerons les résultats.

Nous présenterons et discuterons ensuite les deux méthodes que nous avons utilisées pour combiner les séries de mesures au sein d'un même tissu de mesures afin d'obtenir les masses expérimentales.

Le problème des contaminations sera étudié et l'évaluation de celles dues aux isomères permettra de corriger dans la majeure partie des cas les masses des isotopes concernés.

---

Nous donnerons alors les masses atomiques des noyaux étudiés, ainsi que les "masses secondaires", qui peuvent en être déduites, par combinaison avec d'autres résultats expérimentaux.

## I - MODE DE PRESENTATION DES RESULTATS

Le résultat d'une mesure individuelle d'une séquence (A,B,C) est exprimé correctement par l'ensemble  $(V_A, V_B, V_C)$  des tensions totales vues par chacun des ions A, B et C (équation B.9) et leurs barres d'erreur respectives.

Toutefois, cette présentation n'est pas sans défaut, avant tout parce qu'elle ne se prête pas à la comparaison entre mesures au sein d'une même série ni entre séries différentes, et aussi par sa lourdeur, car elle comporte, pour chaque mesure, 3 données à 7 chiffres significatifs chacune, plus les barres d'erreur.

Pour réduire ces inconvénients, nous opérons comme suit. Nous adoptons un ensemble de valeurs arbitraires, pour tous les isotopes de l'élément étudié, que nous nommons "MASSES D'ESSAI" (et qui sont introduites à l'avance dans l'ordinateur). Pour chaque mesure sur une séquence (A,B,C) nous attribuons aux isotopes B et C ces masses d'essai  $M_B^O$  et  $M_C^O$  et nous déterminons la masse  $M_A^{O'}$  de A ainsi que sa barre d'erreur  $\sigma_A$ , à partir de  $M_B^O$ ,  $M_C^O$  et des trois tensions  $V_A$ ,  $V_B$  et  $V_C$  (équation B.4).

La présentation du résultat d'une mesure se trouve alors réduite à une seule valeur et sa barre d'erreur. Cette valeur est aisément comparée et moyennée (§ C-III-1 ; p. 66) avec celles de la même série de mesures. Les 1552 mesures individuelles qui recouvrent l'ensemble du travail décrit dans cette thèse sont ainsi regroupées en 182 séries de mesures pour lesquelles nous présenterons les résultats.

Les masses d'essai  $M^O$  ainsi que les résultats  $M^{O'}$  seront donnés sous forme d'excès de masse (appendice 1) :  $m^O$  et  $m^{O'}$  (chaque donnée ne comprend plus alors que 4 ou 5 chiffres significatifs).

**TABLEAU 5** : Masses d'Essai adoptées pour les isotopes de Rb, Cs et Fr, présentées sous forme d'excès de masse  $m^0$  (en keV)

Rb		Cs		Fr	
A	$m^0$ (keV)	A	$m^0$ (keV)	A	$m^0$ (keV)
74	- 51867	117	- 65591	204	1000
75	- 57394	118	- 67663	205	- 994
76	- 60731	119	- 71663	206	- 1322
77	- 64896	120	- 73313	207	- 3012
78	- 67073	121	- 76633	208	- 2720
79	- 70883	122	- 77692	209	- 3799
80	- 72190	123	- 80752	210	- 3397
81	- 75445	124	- 81487	211	- 4220
82	- 76213	125	- 84040	212	- 3566
83	- 78987	126	- 84261	213	- 3556
84	- 79752	127	- 86206	220	11470
85	- 82159	128	- 85935	221	13265
87	- 84596	129	- 87563	222	16338
88	- 82600	130	- 86863	223	18382
89	- 81717	131	- 88066	224	21170
90	- 79290	132	- 87175	225	24015
91	- 77800	134	- 86909	226	27100
92	- 74890	137	- 86560	227	29700
93	- 73160	138	- 82800	228	33100
94	- 68760	139	- 80630		
95	- 65660	140	- 77200		
96	- 61350	141	- 74500		
97	- 58400	142	- 70500		
98	- 54140	143	- 67700		
99	- 50840	144	- 63200		
		145	- 60000		
		146	- 55500		
		147	- 51200		



**TABLEAU 6** : Résultats des mesures de la série n° 22 des Rb légers  
(séquence : 78-79-82) avec les masses d'essai du tableau 4  
pour  $^{79}\text{Rb}$  et  $^{82}\text{Rb}$ . L'effet du recentrage des pics (§ B-III-  
3d ; p. 55) sur  $\sigma_{\text{vch}}$  est visible à partir de la 4<sup>e</sup> mesure  
de la série

Mesure n°	$m_A^{\circ'}$	$\sigma_{\text{stat}}$	$\sigma_{\text{volt}}$	$\sigma_{\text{vch}}$
14-22	- 67162	80	46	14.5
14-23	- 67037	102	56	14.7
14-24	- 67096	86	50	14.2
14-25	- 67149	138	67	1.3
14-26	- 67137	66	42	2.1
14-27	- 67158	51	31	1.8
14-28	- 66938	84	50	2.0
14-29	- 67064	51	32	2.1
14-30	- 66956	61	38	2.4

← recentrage

Le tableau 5 présente l'ensemble des "masses d'essai" adoptées. Le tableau 6 donne un exemple de résultats pour la série de mesures utilisant la séquence (78,79,82) des isotopes de Rb (série n° 22 des Rb légers).

## II - RESULTAT D'UNE MESURE

### 1) Critères d'Acceptation ou de Rejet

Nous avons cherché à établir des critères de rejet bien définis et ayant des fondements physiques ; une fois ces critères adoptés, toutes les mesures, auxquelles ils peuvent être appliqués, sont rejetées d'office. Les valeurs numériques auxquelles se réfèrent ces critères seront déterminées plus ou moins empiriquement.

#### *a - Précision sur les Tensions dites "Secondaires"*

En ce qui concerne la tension accélératrice, nous rejetons toutes les mesures pour lesquelles les rapports entre les tensions accélératrices diffèrent de ceux des tensions déflectrices du S.E. de plus d'une quantité que nous fixons à  $6 \times 10^{-5}$ .

Dans la série d'expériences qui couvre tous les résultats que nous allons présenter, un petit déflecteur était placé entre FS et le détecteur, afin de corriger un mauvais alignement de ce dernier. La précision de réglage que nous exigeons pour ce dernier est de  $3 \times 10^{-3}$  ; au delà, les mesures sont rejetées.

#### *b - Largeur des Pics*

### Intérêt

L'étude systématique des largeurs des pics permet de détecter diverses anomalies ayant pu perturber la mesure, comme par exemple :

i) des "bouffées d'ions" dues, lors de l'avance de la dynode mobile du multiplicateur, soit à un dégazage, soit à des parasites produits par le moteur qui assure cette avance ;

ii) des erreurs d'électronique, qui ont autorisé le stockage des données sans respecter le délai imparti (par l'intermédiaire d'un ampli opérationnel) : ce délai devait permettre aux alimentations de tension de se stabiliser après chaque saut ;

iii) la présence de contaminants que nous étudierons plus en détail au paragraphe V du présent chapitre.

### Standard de Largeur

Les pentes des deux flancs de la modulation de balayage triangulaire n'ayant pas nécessairement la même valeur absolue, il nous faut définir deux largeurs de référence : une largeur  $\ell_g^0$  pour le pic de gauche (montée) et une  $\ell_d^0$  pour le pic de droite (descente).

Par ailleurs, l'amplitude de cette modulation reste constante en A, B et C, alors que toutes les autres tensions vues par B et C varient, dans le rapport des masses, par rapport à A, qui, lui, garde toujours la tension nominale. Il s'ensuit qu'en B et C, les pics sont moins larges dans les rapports B/A et C/A. Les largeurs corrigées  $\ell_B'$  et  $\ell_C'$ , qui pourront être comparées aux largeurs de référence définies en A, seront donc du type :

$$\ell_B' = \ell_B \times \frac{B}{A}$$

en fait, on observe qu'il faut ajouter un terme correctif à cette formule qui devient :

$$\ell_B' = \ell_B \times \frac{B}{A} + \epsilon(A - B) \quad (C.1)$$

$\epsilon$  étant un paramètre déterminé empiriquement et qui vaut respectivement pour Rb, Cs et Fr : .016, .010 et .007.

En conclusion, pour un réglage donné de l'appareil, et pour un ensemble de mesures, nous devons définir trois quantités de référence : les standards de largeur gauche et droite et le paramètre  $\epsilon$ . La largeur de

chaque pic est comparée au standard de largeur correspondant et nous calculons la cohérence, compte tenu de l'incertitude statistique  $\sigma_{\ell}$  (cf. Appendice 3) sur cette largeur :

$$\text{Coh}_{i,j} = \frac{\ell'_{ij} - \ell_j^0}{\sigma_{ij}} \quad \begin{array}{l} i = A,B,C \\ j = \text{gauche, droite} \end{array} \quad (\text{C.2})$$

Nous constatons ici, que les fluctuations de largeur peuvent dépasser l'incertitude statistique  $\sigma_{ij}$ , du fait des qualités moyennes du générateur de balayage (§ B-III-1a ; p. 48), des fluctuations de l'alimentation S.E. ou des dérives du champ magnétique. Pour en tenir compte, ainsi que des points ii) et iii) du paragraphe précédent, sera rejetée toute mesure pour laquelle, à la fois,  $\text{Coh}_{ig}$  et  $\text{Coh}_{id}$  sont supérieurs à 3.

#### c - Axes et Dispersion des Axes

Un autre critère, complémentaire de celui des largeurs, et qui peut permettre de détecter des mesures problématiques, est celui des "axes de la modulation de balayage" que nous définissons par :

$$a_A = \frac{1}{2}(A_2 + A_1) \quad (\text{C.3})$$

$A_1$  et  $A_2$  étant les centres de gravité des pics droit et gauche à la masse A, et de même pour  $a_B$  et  $a_C$ . Ces trois valeurs  $a_A$ ,  $a_B$  et  $a_C$  doivent être cohérentes entre elles (compte tenu des incertitudes sur  $A_i$ ).

#### d - Mesures de Tension

Le test imposé par le PDP pour l'acceptation d'une mesure de la tension du S.E. s'est trouvé être à un moment donné (séries 20 à 23 de la première expérience de Fr et séries 34 et 35 de la seconde) un peu trop sévère (§ B-III-2b ; p. 51). Lorsque sur une voie A, B ou C, le nombre de mesures volts rejetées a été supérieur ou égal à celui des mesures volts acceptées, la mesure entière a été rejetée.

## 2) Technique de Dépouillement

Le programme de dépouillement a été progressivement automatisé.

Les 2 pics correspondant à chaque masse étant stockés sur 256 canaux, chacun doit se trouver à peu près centré dans sa zone de 128 canaux. Dans chaque zone, le PDP calcule le centre d'une distribution s'étendant du canal 15 au canal 113 (pour être sûr de bien couvrir le pic). Ce premier calcul donne grossièrement la position du centre du pic cherché par rapport auquel le programme se recentre en utilisant une forme (largeur et dissymétrie) de pic standard (introduite auparavant sous forme de paramètres) et exécute un second calcul, précis celui-ci, du centre de gravité du pic considéré (équation B.6) avec son incertitude statistique (éq. Ap. 3.3), sa largeur (éq. B.7) et l'incertitude sur cette dernière (éq. Ap. 3.5), ainsi que la cohérence de cette largeur avec les standards de largeur (éq. C.2).

Les trois paires de pics de la mesure sont ainsi explorées automatiquement, les axes de la modulation (éq. C.3) sont calculés ainsi que leur dispersion relative. Les tensions correctrices sont ensuite évaluées (éq. B.8). Elles permettent, d'une part, de recentrer les pics dans les mesures ultérieures et, d'autre part, en étant ajoutées aux tensions S.E. mesurées  $V_A^0$ ,  $V_B^0$  et  $V_C^0$ , d'évaluer la masse de l'isotope A (éq. B.4) et les incertitudes statistiques (éq. Ap. 3.11) et de centrage (éq. Ap. 3.12). A partir des  $V_{A,B,C}^0$  sont également calculées les tensions accélératrices  $U_{A,B,C}$  théoriques qui sont comparées aux valeurs effectivement mesurées en vue de l'application des critères d'acceptation ou de rejet.

## III - RESULTAT D'UNE SERIE DE MESURES

### 1) Moyenne Pondérée

Nous moyennons les résultats d'une série de mesures en les pondérant par les seules incertitudes qui n'ont aucune corrélation entre elles. Ainsi seront prises en compte dans cette pondération : les incertitudes statistiques  $\sigma_{\text{stat}}$ , sur le centrage  $\sigma_{\text{vch}}$  et, dans le cas des "Rb légers", l'erreur

volt". Leur somme quadratique détermine l'incertitude expérimentale :

$$\sigma_{A_i}^2 = \sigma_{\text{stat}}^2 + \sigma_{\text{vch}}^2 + \sigma_{\text{volt}}^2 \quad (\text{C.4})$$

i étant le numéro de la mesure considérée au sein de la série de mesures.

Les autres incertitudes, c'est-à-dire celle due aux masses de référence et "l'incertitude limite" (§ B-III-4 ; p. 57) ne seront appliquées qu'à la moyenne ainsi obtenue. Si, pour la première, cela va de soi, nous reconnaissons que pour la seconde, il y a une certaine part d'arbitraire.

i) Doit-on, en effet, considérer qu'une incertitude limite d'environ  $6 \times 10^{-7}$  doive être appliquée à chaque mesure ? Pour un nombre infini de mesures, cette incertitude serait alors réduite à néant. Cela reviendrait à supposer que l'ensemble des incertitudes individuelles qui déterminent cette incertitude limite ne pourrait induire un décalage, qu'elles seraient toutes parfaitement aléatoires.

ii) Ou bien faut-il considérer que l'incertitude limite, de  $2 \times 10^{-7}$  à présent, doive être appliquée à la moyenne des 7 mesures individuelles ? Cela permet de tenir compte d'erreurs systématiques éventuelles, mais rend vaine la multiplication indéfinie du nombre de mesures, et signifie que la confiance que l'on peut accorder à notre appareil ne peut aller au delà de  $2 \times 10^{-7}$  (c'est-à-dire 20 keV à la masse  $A = 100$ ).

La prudence et la raison nous commandent d'opter pour ce second choix.

La moyenne pondérée de la série de mesures a pour expression (la fonction de pondération déduite de la méthode des moindres carrés étant

$\mu_i = \sigma_{A_i}^{-2}$ ) :

$$\overline{m_A^{o'}} = \frac{\sum_{i=1}^n \mu_i m_{A_i}^{o'}}{\sum_{i=1}^n \mu_i} \quad (\text{C.5})$$

et son incertitude  $\sigma_A$  est donnée par :

$$\frac{1}{\sigma_A^2} = \sum_{i=1}^n \frac{1}{\sigma_{A_i}^2} \quad (\text{C.6})$$

Ceci n'est strictement vrai que si les  $\sigma_{A_i}$  suivent une loi normale. Pour le vérifier, nous évaluons le facteur de cohérence W.V.F. (weighted variance of fit) défini par :

$$WVF^2 = \frac{\sum_{i=1}^n \mu_i (m_{Ai}^{o'} - \overline{m_A^{o'}})^2}{n-1} \quad (C.7)$$

WVF doit être voisin de l'unité. Si ce n'est pas le cas, et si WVF n'est pas trop grand ( $< 2$  ou  $3$ ),  $\sigma_A$  peut être multiplié par WVF pour être plus réaliste. Par contre si WVF est très grand par rapport à 1, la moyenne pondérée n'a plus de sens, car il existe d'autres incertitudes, non déterminées, et beaucoup plus importantes que  $\sigma_A$ . On peut alors adopter une égale pondération pour tous les  $m_{Ai}^{o'}$  et retrouver ainsi la moyenne arithmétique :

$$\overline{m_A^{o'}} = \frac{\sum_{i=1}^n m_{Ai}^{o'}}{n} \quad (C.8)$$

et l'incertitude sur cette moyenne (déduite de la dispersion) est :

$$\sigma_A^a = \frac{\sum_{i=1}^n (m_{Ai}^{o'} - \overline{m_A^{o'}})^2}{n(n-1)} \quad (C.9)$$

$\sigma_A^a$  est l'"écart-moyen".

## 2) Résultats

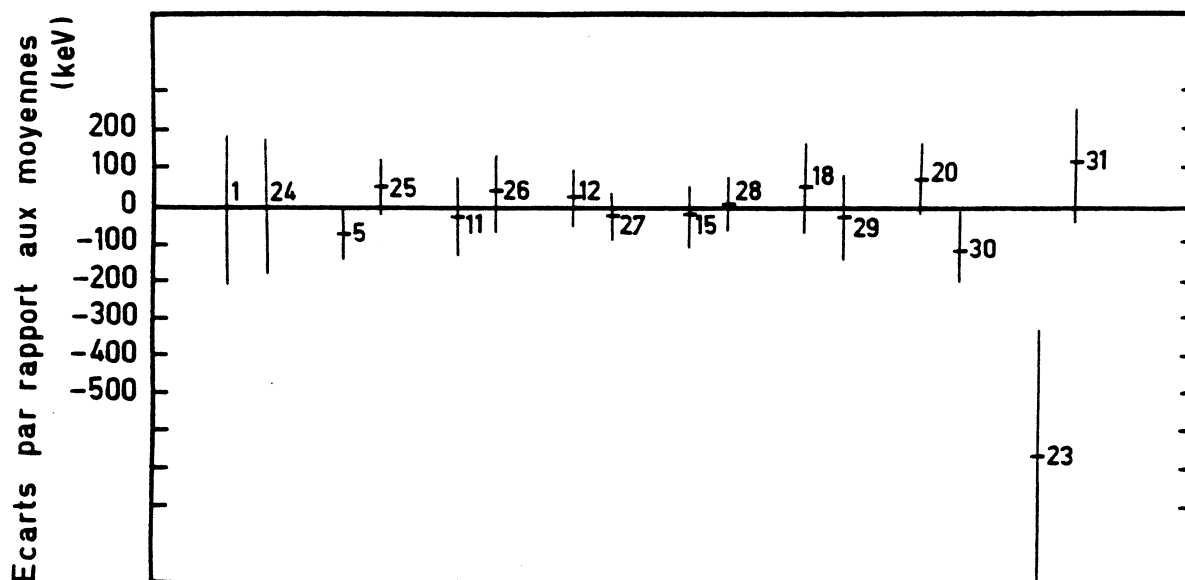
Etant, a priori, indépendante des trois termes qui composent les  $\sigma_{Ai}$  (éq. C.4), l'incertitude limite  $\sigma_{lim}$  doit être ajoutée quadratiquement à  $\sigma_A$ , pour donner l'incertitude totale expérimentale :

$$\sigma_T^2 = \sigma_A^2 + \sigma_{lim}^2 \quad (C.10)$$

Dans les tableaux 7 à 11, les résultats sont présentés, pour toutes les séries de mesures. Ils sont regroupés dans les 5 tissus de mesures définis par l'élément et le mécanisme de réaction considéré : "Rb légers", "Rb lourds", "Cs légers", "Cs lourds" et "Fr". Les incertitudes expérimentales  $\sigma_A$  ainsi que les incertitudes limites  $\sigma_{lim}$  sont portées séparément, suivies de leur somme quadratique qui peut être ainsi comparée à l'écart-moyen  $\sigma_A^a$  (éq. C.9) et au produit  $\sigma_A \times WVF$  lorsque  $WVF \gtrsim 1$ .

On peut remarquer sur le tableau 11 que plusieurs séquences ont été répétées à la seconde expérience sur les isotopes de Fr, huit mois après la première. Ceci afin de tester la reproductibilité de notre méthode. Les résultats des séquences identiques sont comparés sur la figure 20.

En règle générale, l'incertitude totale expérimentale  $\sigma_T$  semble assez réaliste vis-à-vis de la dispersion  $\sigma_A^a$  des résultats. Le fait qu'assez souvent  $\sigma_A^a$  soit largement inférieur à  $\sigma_T$  ne doit pas faire illusion, seul  $\sigma_T$  reste valable : en effet, les causes qui créent  $\sigma_{lim}$  peuvent être, dans un intervalle de temps donné, peu fluctuantes, donnant une faible dispersion  $\sigma_A^a$  ; il n'en résulte aucunement qu'elles soient au zéro de leurs fluctuations, il se pourrait même qu'elles soient à l'un des extrêmes.



**FIGURE 20** : Comparaison entre les résultats de paires de séquences identiques, obtenus dans chacune des deux expériences sur les isotopes de Fr (voit tableau 11). La droite d'ordonnée nulle donne la moyenne pondérée de la paire. Les masses  $m_A^0$  pour chaque séquence sont situées par rapport à cette droite, avec leurs barres d'erreur et le numéro de série de la séquence



**TABEAU 7** : Résultats des séries de mesures effectuées sur les isotopes de rubidium déficients en neutrons ("Rb légers"). Pour cet ensemble uniquement,  $\sigma_{\text{volt}}$  a dû être pris en compte et est (voir texte) inclus dans  $\sigma_A$ .

Séries 1 à 25 : première expérience

Séries 26 à 34 : seconde expérience avec le multiplicateur à dynode mobile

Série n°	Séquence	$m_A^{o'}$	$\sigma_A$	$\sigma_{\text{lim}}$	$\sigma_T$	$\sigma_A^a$	$\sigma_A \times \text{WVF}$
1+10+15+16	83-85-87	-79058	20	41	<u>46</u>	43	41
3	76-77-79	-60541	97	28	101	113	<u>105</u>
4	77-79-80	-64808	52	58	<u>78</u>	68	66
5	82-83-85	-75870	24	31	<u>39</u>	27	28
6+20	79-81-83	-70898	31	40	<u>51</u>	50	52
7+8+9+21	81-83-85	-75101	27	40	<u>48</u>	46	46
11+17	80-82-83	-72479	35	60	<u>69</u>	62	58
12	80-81-83	-72178	22	30	37	50	<u>40</u>
13+24	78-79-80	-67012	29	38	<u>48</u>	42	38
14	77-78-79	-65217	60	38	71	95	<u>79</u>
18	79-80-81	-70844	42	39	<u>57</u>	24	23
19	79-80-82	-70900	34	30	45	56	<u>56</u>
22	78-79-82	-67079	27	27	<u>38</u>	29	18
23	78-81-82	-66512	86	80	117	129	<u>133</u>
25	78-79-81	-67009	35	29	<u>45</u>	48	46
26+27	75-76-78	-57394	36	28	46	57	<u>56</u>
28+30	76-77-78	-60296	9	37	<u>38</u>	22	23
29	76-77-79	-60448	9	28	30	55	<u>56</u>
31	74-75-76	-51903	336	36	<u>338</u>	250	218
32	74-75-77	-51728	554	28	<u>555</u>	383	354
33	75-76-77	-57589	35	37	51	57	<u>60</u>
34	75-77-79	-57241	57	37	<u>68</u>	67	65

**TABEAU 8 : Résultats des séries de mesures effectuées sur les isotopes de rubidium riches en neutrons ("Rb lourds")**

Série n°	Séquence	$m_A^{O'}$	$\sigma_A$	$\sigma_{lim}$	$\sigma_T$	$\sigma_A^a$	$\sigma_A \times WVF$
1	81-83-85	-75279	15	40	<u>42</u>	41	41
2	81-82-83	-75674	22	40	<u>45</u>	30	32
3	83-85-87	-79065	15	41	44	67	<u>62</u>
4	83-84-87	-79640	10	28	30	43	<u>47</u>
5	85-89-90	-82165	36	110	<u>116</u>	121	114
6	85-89-92	-82062	20	49	<u>53</u>	55	51
7	85-90-92	-82122	26	75	<u>79</u>	75	77
8	85-90-91	-82370	32	134	<u>138</u>	140	141
9	85-91-92	-82291	53	158	<u>166</u>	65	60
10	85-88-92	-82158	12	37	<u>38</u>	28	23
11	87-88-89	-84540	18	43	<u>46</u>	15	13
12	89-92-94	-81752	21	55	<u>59</u>	48	44
13	89-90-92	-81728	9	33	<u>35</u>	10	11
14	89-93-95	-83220	31	67	<u>73</u>	39	33
15	89-93-96	-82504	32	51	<u>60</u>	53	53
16	89-95-96	-79272	133	165	<u>212</u>	133	132
17	89-94-96	-81544	73	79	<u>107</u>	87	86
18	90-94-95	-80104	62	117	<u>132</u>	128	120
19	90-93-95	-80488	16	55	<u>58</u>	29	25
20	90-93-94	-80791	30	92	<u>97</u>	55	51
21	90-92-94	-79352	7	44	<u>45</u>	13	12
22	90-91-93	-79071	4	34	<u>34</u>	13	12
23	91-92-93	-77507	6	45	<u>45</u>	13	13
24	91-92-95	-77942	4	31	<u>31</u>	24	20
25	91-94-96	-78223	25	56	<u>61</u>	63	59
26	91-94-97	-78323	19	45	<u>48</u>	22	23
27	91-94-98	-78338	46	39	<u>60</u>	125	46
28	92-95-96	-73731	48	94	<u>105</u>	61	50
29	92-96-97	-75371	106	119	<u>159</u>	107	120
30	93-95-97	-72171	16	46	<u>48</u>	22	24
31	93-97-98	-73069	252	121	<u>279</u>	300	277
32	93-97-99	-72709	269	70	<u>278</u>	167	156
33	94-96-98	-68796	45	46	64	68	<u>66</u>
34	95-97-98	-65793	105	71	127	139	<u>144</u>
35	95-98-99	-66286	676	97	<u>683</u>	357	419

**TABLEAU 9** : Résultats des séries de mesures effectuées sur les isotopes de césium déficients en neutrons ("Cs légers")

Série n°	Séquence	$m_A^{o'}$	$\sigma_A$	$\sigma_{lim}$	$\sigma_T$	$\sigma_A^a$	$\sigma_A \times WVF$
1+33	128-131-132	-85966	8	131	<u>131</u>	71	78
2	117-118-119	-65461	84	57	<u>102</u>	77	80
3	117-118-120	-65589	104	44	113	168	<u>184</u>
4+26	124-126-128	-81437	3	61	<u>61</u>	35	17
5	117-119-120	-65660	107	88	<u>138</u>	51	61
6	118-119-120	-67617	25	58	63	<u>68</u>	61
7	118-119-121	-67625	23	44	<u>50</u>	37	37
8	118-120-121	-67655	30	88	<u>93</u>	61	61
9	119-120-121	-71617	6	58	<u>59</u>	15	11
11	119-120-124	-71644	8	39	<u>39</u>	25	24
12	120-121-124	-73267	5	41	41	45	<u>42</u>
14	120-123-124	-73199	10	122	<u>123</u>	24	25
16	121-123-126	-76609	5	50	<u>50</u>	7	9
17	121-124-126	-76659	5	75	<u>75</u>	43	41
18	122-124-126	-77672	5	60	<u>60</u>	25	20
21	122-124-128	-77665	8	46	<u>46</u>	31	21
22	122-126-128	-77776	23	91	94	99	<u>97</u>
23	123-126-128	-80795	14	76	<u>77</u>	48	48
24	123-124-128	-80775	15	40	43	55	<u>57</u>
25	123-124-126	-80720	17	46	<u>49</u>	33	33
27	124-125-128	-81530	1	42	<u>42</u>	27	21
28	124-125-126	-81581	2	61	<u>61</u>	19	19
29	126-127-128	-84175	2	62	<u>62</u>	15	11
30	126-128-129	-84272	3	94	<u>94</u>	38	34
31	126-128-131	-84273	2	52	<u>52</u>	13	13
32	128-129-131	-85792	1	48	<u>48</u>	14	14
34	119-120-122	-71691	56	45	72	79	<u>79</u>
35	120-121-123	-73357	26	45	<u>52</u>	50	44
36	121-123-124	-76147	10	91	<u>91</u>	14	14
37	125-127-128	-83345	18	94	<u>95</u>	58	59

**TABEAU 10 : Résultats des séries de mesures effectuées sur les isotopes de césium riches en neutrons ("Cs lourds")**

Série n°	Séquence	$m_A^{o'}$	$\sigma_A$	$\sigma_{lim}$	$\sigma_T$	$\sigma_A^a$	$\sigma_A^{xWVF}$
1	125-129-130	-84095	137	162	<u>212</u>	154	121
2	128-130-132	-86143	32	63	<u>70</u>	33	31
3	130-131-134	-86687	25	44	51	72	<u>67</u>
4	131-139-140	-86283	136	317	<u>344</u>	266	231
5	131-139-141	-88040	98	170	<u>196</u>	83	70
6	131-140-141	-89988	162	353	<u>389</u>	274	265
7	132-140-142	-87844	59	171	<u>181</u>	161	133
8	132-139-142	-87034	36	111	<u>116</u>	53	51
9	132-139-141	-86674	65	153	<u>166</u>	128	118
10	132-139-140	-85889	79	282	<u>293</u>	128	125
11	139-142-145	-80899	61	68	<u>91</u>	123	83
12	139-142-144	-80752	64	86	<u>107</u>	50	52
13	139-140-142	-80872	22	52	<u>56</u>	41	40
14	139-141-142	-81137	64	104	<u>122</u>	123	117
15	139-141-143	-80668	49	68	<u>84</u>	67	65
16	139-144-145	-80751	222	219	<u>312</u>	321	312
17	139-144-146	-83066	209	123	<u>242</u>	227	216
18	140-145-147	-80169	279	124	305	562	<u>562</u>
19	140-145-146	-77868	370	220	<u>431</u>	205	199
20	140-141-142	-77161	22	69	<u>72</u>	30	28
21	140-143-145	-76972	76	86	115	177	<u>188</u>
22	140-143-144	-77237	89	143	168	220	<u>201</u>
23	141-142-144	-74505	21	53	<u>57</u>	25	20
24	141-143-145	-74585	51	69	<u>86</u>	62	61
25	141-144-147	-74736	476	69	<u>481</u>	1121	275
26	142-143-144	-70435	33	70	77	89	<u>91</u>
27	143-144-145	-67550	53	70	<u>88</u>	73	53
28	143-144-146	-67447	50	54	<u>73</u>	67	66
29	137-141-142	-87118	85	178	<u>197</u>	155	148
30	137-138-139	-86471	18	67	<u>69</u>	31	33
31	137-138-142	-86440	16	44	<u>47</u>	11	11

**TABLEAU 11** : Résultats des séries de mesures effectuées sur les isotopes de francium ("Fr") - séries 1 à 23 : première expérience  
séries 24 à 46 : seconde expérience

Série n°	Séquence	$m_A^{O'}$	$\sigma_A$	$\sigma_{lim}$	$\sigma_T$	$\sigma_A^a$	$\sigma_A^{xWVF}$
1+24	213-221-225	- 3930	77	159	<u>177</u>	117	111
2	212-213-222	- 3528	13	64	<u>65</u>	35	40
3	212-213-223	- 3567	23	63	<u>67</u>	54	54
4	211-212-213	- 4119	22	103	<u>105</u>	87	86
5+25	210-212-220	- 3244	13	68	<u>69</u>	63	61
6	210-213-222	- 3501	20	71	<u>74</u>	62	56
7	210-211-213	- 3304	25	79	<u>83</u>	74	73
8	209-211-221	- 3868	23	66	<u>70</u>	46	47
9	209-213-220	- 3732	20	81	<u>83</u>	68	66
10	209-212-220	- 3872	19	73	<u>75</u>	54	68
11+26	209-210-211	- 3742	20	102	<u>104</u>	55	56
12+27	208-210-220	- 2721	20	66	<u>69</u>	37	35
13	208-211-220	- 2795	19	71	74	94	<u>86</u>
14	208-212-220	- 2646	22	78	<u>81</u>	77	94
15+28	208-209-213	- 2644	22	67	<u>71</u>	47	46
16	208-209-210	- 2672	36	102	<u>108</u>	116	103
17	207-209-213	- 2924	44	77	<u>89</u>	59	63
18+29	207-208-209	- 3083	40	101	<u>109</u>	74	66
19	206-208-213	- 1421	42	73	<u>84</u>	80	87
20+30	206-208-211	- 1316	25	85	<u>89</u>	61	61
21	206-207-208	- 1521	61	101	<u>118</u>	137	116
22	206-207-212	- 1533	53	65	<u>84</u>	49	45
23+31	205-207-211	- 1044	129	77	<u>150</u>	245	148
32	205-206-212	- 1358	136	63	<u>150</u>	146	137
33	205-206-207	- 1502	150	100	<u>180</u>	142	153
34	205-209-212	- 1196	94	118	<u>151</u>	125	125
35	220-222-224	+11548	61	108	124	130	<u>137</u>
36	220-223-226	+11473	116	108	<u>158</u>	85	89
37	221-223-224	+13213	111	165	<u>199</u>	138	141
38	221-224-225	+12578	216	225	<u>312</u>	208	193
39	221-225-226	+14780	355	286	456	479	<u>480</u>
40	221-224-227	+13299	121	108	<u>162</u>	133	125
41	223-224-225	+17979	117	109	<u>160</u>	124	120
42	224-225-226	+21479	129	110	<u>170</u>	165	164
43	220-225-227	+11635	387	194	<u>433</u>	321	316
44	220-223-224	+11750	174	224	<u>284</u>	205	198
45	220-224-228	+10726	614	108	<u>623</u>	234	225
46	204-207-213	+ 897	400	76	<u>407</u>	683	<u>491</u>

#### IV - COMBINAISON DES SERIES DE MESURES

##### 1) Principe

Chaque séquence met en jeu 3 isotopes d'un élément donné et la série de mesures établit une relation, tisse un lien entre ces trois points, avec, bien entendu, une certaine barre d'erreur. Chaque isotope intervenant dans plusieurs séquences, il se constitue un réseau aux mailles flottantes (du fait des barres d'erreur) dans lequel les quantités dont il s'agit de déterminer la position, c'est-à-dire la masse, constitueraient les noeuds.

L'analogie la plus frappante et qui fait bien ressortir le problème est celle de la topométrie utilisant les procédés de triangulation. Ici, nous triangulons toute une région de masses (déterminée par un élément donné).

Cette image nous permet d'évaluer l'impact d'éventuelles contaminations (qui seront traitées au § V) sur nos résultats. Supposons, comme c'est le cas probablement de  $^{224}\text{Fr}$ , qu'un isotope soit contaminé, de façon constante pendant toute une expérience, sa masse apparaîtra déplacée par rapport à sa vraie valeur et sa mesure sera faussée. Cependant, de même que lors d'un relevé topographique, l'utilisation par erreur d'un clocher A' au lieu du clocher A de référence conduira à assigner sur la carte une position fausse au clocher A, et des positions correctes aux autres points topographiques, à la condition de toujours employer A' au lieu de A, de même, le décalage de la mesure d'une masse contaminée n'affectera pas les valeurs des autres masses qui prennent appui sur elle.

Nous allons à présent examiner deux méthodes différentes d'analyse des résultats des séries de mesures afin d'en tirer les valeurs des masses de chaque isotope impliqué. La première, chronologiquement aussi, est dite du "Pas à Pas" ; elle est représentative de la démarche expérimentale allant des isotopes les plus stables vers les plus exotiques : chaque isotope ayant eu sa masse mesurée, dans un ensemble de séries de mesures où il était le seul inconnu, servira de référence (dite "référence secondaire" par opposition aux références primaires issues des tables de masses) lors de la détermination des inconnus restants. Cette première méthode, perfectible, certes,

Tableau 12 : Ensemble des masses connues [Wap 77] utilisées dans ce travail et candidates aux références primaires. Celles pour lesquelles des isomères existent sont marquées d'un astérisque.

Rb		Cs		Fr	
80	- 72190 ± 23	125	- 84040 ± 40	211	- 4220 ± 50
81*	- 75445 ± 35	127	- 86206 ± 21	213	- 3556 ± 11
82*	- 76213 ± 20	128	- 85935 ± 6	220	+ 11470 ± 8
83	- 78987 ± 32	129	- 87563 ± 24	221	+ 13265 ± 12
84*	- 79752 ± 4	130*	- 86863 ± 12	222	+ 16338 ± 50
85	- 82159 ± 3	131	- 88066 ± 8	223	+ 18382 ± 4
87	- 84596 ± 3	132	- 87175 ± 23		
88	- 82600 ± 12	134*	- 86909 ± 8		
89	- 81717 ± 13	137	- 86560 ± 7		
		139	- 80630 ± 70		

quant à l'analyse fine des résultats, n'en est pas moins correcte comme nous allons le voir et garde tout son intérêt pendant la durée de l'expérience où elle est utilisée, sous une forme allégée (sur HP65), afin de livrer sur le champ l'allure des résultats et leur cohérence. La seconde méthode, dite "Globale" est mathématiquement plus élégante et rigoureuse et permettra, en dehors de l'expérience, de par sa souplesse de manipulation (sur l'UNIVAC d'Orsay), des analyses variées.

## 2) Première Méthode : Pas à Pas

Les tableaux 7 à 11 donnent  $m_A^{O'}$  en fonction de  $m_B^O$  et  $m_C^O$  et des tensions ( $V_A, V_B, V_C$ ). Si l'isotope X dont nous voulons évaluer la masse se trouve en position B ou C, une conversion des données ci-dessus ( $m_A^{O'}$ ,  $m_B^O$ ,  $m_C^O$ ) doit être effectuée et l'on obtient, dans chacun de ces deux cas (par un calcul analogue à celui effectué à l'appendice 3) :

$$m_B^{O'} = m_B^O + \frac{M_B^O}{M_A^O} \times \frac{M_C^O - M_B^O}{M_C^O - M_A^O} (m_A^{O'} - m_A^O) \quad (C.11)$$

$$m_C^{O'} = m_C^O + \frac{M_C^O}{M_A^O} \times \frac{M_C^O - M_B^O}{M_B^O - M_A^O} (m_A^{O'} - m_A^O) \quad (C.11bis)$$

Nous allons examiner deux cas possibles : celui où les masses de référence  $\alpha, \beta, \dots$  sont toutes des références primaires (issues des tables [Wap 77]), leur incertitude étant  $\sigma(\alpha), \sigma(\beta), \dots$ , puis celui où certaines masses qui viennent d'être mesurées servent de masses de référence "secondaires" dans l'étude d'un isotope plus exotique.

Le tableau 12 donne les références primaires utilisées dans le travail décrit ici. Cet ensemble n'est pas aussi confortable qu'il veut bien paraître du fait de la présence pour certaines d'entre elles de contaminants : isomères pour  $^{81}\text{Rb}$ ,  $^{82}\text{Rb}$ ,  $^{84}\text{Rb}$ ,  $^{130}\text{Cs}$  et  $^{134}\text{Cs}$  (marqués d'un astérisque) ou autres contaminations se traduisant par un élargissement des pics (par exemple  $^{85}\text{Rb}$  et  $^{87}\text{Rb}$  dans le tissu des Rb légers). Ainsi, si l'on excepte les isotopes impliqués dans les redéterminations de masses connues (dont nous



parlerons plus loint), il ne reste plus comme références primaires effectives que :

les isotopes 80 et 83 pour le tissu "Rb légers",  
 les isotopes 85, 88 et 89 pour le tissu "Rb lourds",  
 les isotopes 125, 127, 128, 129 et 131 pour le tissu "Cs légers",  
 les isotopes 131, 132, 137 et 139 pour le tissu "Cs lourds",  
 et les 6 références primaires pour le tissu "Fr".

#### a - Références Primaires uniquement

Soit donc  $E = (m_{X_r}^{o'}, m_{X_s}^{o'}, m_{X_t}^{o'}, \dots, m_{X_z}^{o'})$ , l'ensemble des résultats obtenus pour l'isotope X dans toutes les séquences r, s, t, ... dans lesquelles X est la seule inconnue. Nous distinguons pour chacune de ces séquences deux contributions à l'incertitude  $\sigma_r, \sigma_s, \sigma_t \dots$  sur X: l'incertitude expérimentale  $\sigma_\rho, \sigma_\sigma, \sigma_\tau \dots$ , donnée dans les tableaux 7 à 11 (valeur adoptée soulignée) et l'incertitude due aux masses de référence (eq. Ap3.13 et Ap 3.13bis de l'appendice 3).

La masse résultante de l'isotope X sera obtenue en pondérant les éléments de E avec des poids  $\mu_r, \mu_s, \mu_t, \dots$  qui seront précisés plus loin :

$$m_X' = \sum_r \mu_r m_{X_r}^{o'} \quad (C.12)$$

et l'incertitude sur cette quantité est :

$$\sigma^2(X) = \left\{ \sum_r \mu_r \sigma_r \right\}^2 \quad (C.13)$$

ou encore :

$$\sigma^2(X) = \left\{ \sum_r \mu_r \left[ \sigma_\rho(X) + \sum_\alpha \frac{\partial m_{X_r}^{o'}}{\partial m_\alpha^o} \sigma(\alpha) \right] \right\}^2 \quad (C.13bis)$$

les  $\alpha$  étant les masses de référence intervenant dans les séquences r, s, t, ... . Dans cette expression, les différentes incertitudes  $\sigma_\rho(X)$  ou  $\sigma(\alpha)$  étant indépendantes, les termes orthogonaux sont nuls, d'où :

$$\sigma^2(X) = \sum_r \left[ \mu_r \sigma_\rho(X) \right]^2 + \sum_\alpha \left[ \sum_r \mu_r \frac{\partial m_{X_r}^{o'}}{\partial m_\alpha^o} \right]^2 \sigma^2(\alpha) \quad (C.14)$$

où l'on reconnaît la somme des carrés des erreurs expérimentales pondérées, et une série de termes traduisant la contribution de chacune des masses de référence  $\alpha$  à l'incertitude totale sur  $X$ .

Les poids  $\mu_r, \mu_s, \mu_t, \dots$  seront ceux qui minimisent  $\sigma(X)$ , avec une contrainte, qui est leur normalisation

$$g = \sum_r \mu_r - 1 = 0 \quad (C.15)$$

On applique la méthode des multiplicateurs de Lagrange et l'on obtient un système de  $r + 1$  équations à  $r + 1$  inconnues, les  $\mu_r$  et  $\lambda$  le multiplicateur de Lagrange :

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial \sigma^2}{\partial \mu_r} &= \lambda \frac{\partial g}{\partial \mu_r} \\ g &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (C.16)$$

qui peut encore s'écrire, en repartant de (C.13) :

$$\left. \begin{aligned} 2\sigma_r \sum_s \mu_s \sigma_s &= \lambda \\ \sum_r \mu_r &= 1 \end{aligned} \right\} \quad (C.17)$$

soit encore, sous forme matricielle :

$$\begin{pmatrix} \sigma_r^2 & \sigma_r \sigma_s & \sigma_r \sigma_t & \dots & \sigma_r \sigma_z & -1 \\ \sigma_s \sigma_r & \sigma_s^2 & \sigma_s \sigma_t & \dots & \sigma_s \sigma_z & -1 \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ \sigma_z \sigma_r & \sigma_z \sigma_s & \sigma_z \sigma_t & \dots & \sigma_z^2 & -1 \\ 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 0 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} \mu_r \\ \mu_s \\ \mu_t \\ \dots \\ \mu_z \\ \lambda \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ \dots \\ 0 \\ .5 \end{pmatrix} \quad (C.18)$$

dans laquelle, les termes non-diagonaux  $\sigma_r \sigma_s$  seront non nuls si, et seulement si, les séquences  $r$  et  $s$  ont une masse de référence en commun, ainsi qu'on peut le vérifier aisément.

Si le déterminant de la matrice carrée de dimension  $(n+1)$  est non nul, nous avons un système de CRAMER à  $(n+1)$  dimensions, dont la solution est unique.

### b - Références Primaires et Secondaires

Les masses de référence secondaires contiennent implicitement dans l'expression de leur incertitude, des termes  $\sigma(\alpha)$ ,  $\sigma(\beta)$ ,... venant des références primaires. Lors de la minimisation de  $\sigma(Y)$  (dans l'étude de l'isotope Y) il faudra expliciter ces termes afin de tenir compte de toutes les corrélations et évaluer correctement la propagation des incertitudes venant des masses de référence primaires. Au sein d'une équation semblable à (C.13bis) on pourra retrouver, outre l'incertitude expérimentale et des termes en  $\sigma(\alpha)$ , d'autres termes en  $\sigma(\alpha)$  venant des références secondaires qui devront être regroupés avec les précédents avant d'élever au carré ou d'effectuer des produits du type  $\sigma_r \sigma_s$ . Le reste du traitement est identique au précédent.

### c - Redétermination de Masses Connues

Dans l'ensemble des séquences utilisées, quelques unes (tableaux 7 à 11) utilisent 3 masses de référence primaires. Elles ont été réalisées pour tester l'ensemble de la méthode expérimentale et d'en détecter les écarts systématiques éventuels. Le tableau 13 permet de comparer les résultats obtenus, pour chaque séquence, avec les valeurs des tables de masses

**Tableau 13** : Résultats des mesures de masses connues dans la méthode "Pas à Pas"

	Série n°	Séquence	(M-A) <sub>exp</sub> (keV)	(M-A) <sub>tables</sub> (keV)	Déviatiion
Rb de Fission	3	83-85-87	M(83) = -79065± 62	-78987±32	- 1.1
	11	87-88-89	M(87) = -84540± 53	-84596± 3	+ 1.0
Cs de Spalla- tion	1+33	128-131-132	M(128)= -85966±150	-85935± 6	- 0.2
	32	128-129-131	M(128)= -85792± 60	-85935± 6	+ 2.4

[Wap 77] ; dans la colonne "déviatiOn" est reporté l'écart entre ces deux valeurs, divisé par la somme quadratique de leurs incertitudes. Nous observons des déviations raisonnables et aucun effet systématique n'est visible à cette échelle. La méthode "Globale" sera plus convaincante à ce sujet (§ C-IV-3f ; p. 95) et conduira à la même conclusion.

#### *d - Résultats*

Les résultats obtenus par la méthode "Pas à Pas" sont présentés intégralement dans deux publications : [Eph 79] pour les isotopes de Rb et Cs, et [Eph 80] pour ceux de Fr. Nous nous proposons ici de ne les présenter et discuter que par comparaison (cf. § C-IV-3e ; p. 93) avec ceux issus de la méthode "Globale".

### 3) Seconde Méthode : Globale

La méthode précédente présente deux légers inconvénients. Tout d'abord celui de ne pas permettre, si l'une des masses de référence venait à changer, une évaluation aisée des nouveaux résultats en masse : la série complète des calculs doit être refaite, et un traitement par programme d'ordinateur ne peut être envisagé sous une forme simple. De plus, comme l'a fait remarquer A.H.WAPSTRA à la conférence de Nashville de 1979 [Wap 80], nos résultats ainsi présentés ne peuvent être combinés à ceux provenant d'autres expériences en vue d'établir une table de masses. La réalisation de celle-ci implique un ajustement, par la méthode des moindres carrés, de toutes les données expérimentales exprimées sous forme de relations linéaires entre masses [Bos 78] et [Wap 77].

Pour cette raison, les résultats de nos mesures de masses doivent être présentés, eux aussi, sous forme de relations linéaires.

Après avoir décrit la méthode de linéarisation, qui nous conduira à un système de  $M$  équations pondérées (une pour chaque série de mesures) à  $N$  inconnues (les masses à déterminer) (avec  $M \gg N$ ), nous rappellerons le principe de la méthode des moindres carrés qui sera ensuite appliquée à ce système d'équations. Les résultats ainsi obtenus seront comparés à ceux de

la méthode "Pas à Pas" et nous étudierons leur stabilité par rapport aux variations des masses de référence. Nous présenterons enfin des résultats actualisés qui utilisent les masses de référence récentes que nous a communiquées, à titre privé, A.H.WAPSTRA.

#### a - Méthode de Linéarisation

Partant de l'équation (B.3) :

$$M_A(V_A + \delta) = M_B(V_B + \delta) = M_C(V_C + \delta)$$

nous pouvons, en éliminant  $\delta$ , écrire la relation (B.4) sous la forme :

$$\frac{V_B - V_C}{M_A} + \frac{V_C - V_A}{M_B} + \frac{V_A - V_B}{M_C} = 0 \quad (C.19)$$

qui est linéaire en  $\frac{1}{M}$ . Nous voulons d'une part la rendre linéaire en  $M$  et d'autre part ne pas avoir à manipuler des différences de tensions et leurs incertitudes expérimentales (d'autant plus que ces dernières quantités n'ont pas d'existence expérimentale pour une série de mesures, mais uniquement pour des mesures individuelles).

#### Elimination des $V_i - V_j$

Pour chaque séquence, nous connaissons une solution particulière de l'équation (C.19), c'est celle présentée dans les tableaux 7 à 11 utilisant les masses d'essai du tableau 5 :  $(M_A^{O'} \pm \sigma, M_B^O, M_C^O)$ . Les différences de tensions  $(V_i - V_j)$  peuvent être exprimées en fonction des différences de masses à partir de l'équation (B.3) :

$$M_A^{O'}(V_A + \delta) = M_B^O(V_B + \delta) = M_C^O(V_C + \delta) = K$$

$$\begin{aligned} V_A - V_B &= (V_A + \delta) - (V_B + \delta) \\ &= \frac{K}{M_A^{O'}} - \frac{K}{M_B^O} = K \frac{M_B^O - M_A^{O'}}{M_A^{O'} M_B^O} \end{aligned}$$

en les remplaçant dans (C.19) et après simplification, on obtient :

$$\frac{M_A^{O'}(M_C^O - M_B^O)}{M_A} + \frac{M_B^O(M_A^{O'} - M_C^O)}{M_B} + \frac{M_C^O(M_B^O - M_A^{O'})}{M_C} = 0 \pm \sigma' \quad (C.20)$$

avec  $\sigma' = \sigma \frac{M_C^O - M_B^O}{M_A^{O'}}$

### Approximation linéaire

Afin de transformer (C.20) en une relation linéaire en masse, nous définissons les "corrections de masses"  $\mu_i$  :

$$\mu_i = M_i - M_i^O$$

d'où  $M_i = M_i^O \left( 1 + \frac{\mu_i}{M_i^O} \right)$

en remplaçant  $M_i$  par cette expression dans (C.20) et en effectuant un développement limité, où les termes d'ordre zéro s'annulent, nous obtenons au 1<sup>er</sup> ordre :

$$\mu_A \frac{M_C^O - M_B^O}{M_A^{O'}} + \mu_B \frac{M_A^{O'} - M_C^O}{M_B^O} + \mu_C \frac{M_B^O - M_A^{O'}}{M_C^O} = 0 \pm \sigma' \quad (C.21)$$

avec au second ordre des termes du type :

$$\left( \frac{\mu_i}{M_i^O} \right)^2 \Delta M^O \quad (C.22)$$

Dans ces derniers, les  $\mu_i$  sont en général inférieurs à 1 MeV (en fait dans les mesures des Rb, Cs et Fr considérés ici, ils ne dépassent pas 500 keV) et les différences de masses  $\Delta M^O$  sont plus petites que 12 GeV. Les termes (C.22) sont donc de l'ordre de 1 eV. D'autre part les incertitudes  $\sigma$  sont toujours supérieures à 30 keV, d'où des  $\sigma'$  plus grands que 5 keV. Il est donc amplement justifié de négliger les termes du 2<sup>e</sup> ordre.

Il va de soit, d'après ce que nous venons de dire, que le choix des "masses d'essai" (tableau 5) n'est pas totalement arbitraire, mais tend à se

placer le plus près possible des valeurs "vraies" afin de rendre les "corrections de masses"  $\mu_i$  aussi petites que possible. Pour cela nous nous basons sur les estimations des tables pour les valeurs non connues (valeurs cotées SYST dans [Wap 77]) et aussi sur les prédictions de masses dues à différents modèles et regroupées dans [Mar 76].

### Relations entre Excès de Masses

Les "corrections de masse"  $\mu_i$  sont à présent converties en excès de masse atomique  $m_i$  :

$$\begin{aligned}\mu_i &= M_i - M_i^0 = (A_i + m_i) - (A_i + m_i^0) \\ &= m_i - m_i^0\end{aligned}\tag{C.23}$$

et  $\mu_i$  est remplacé par son expression dans l'équation (C.21). Nous obtenons après normalisation du premier coefficient :

$$m_A + m_B \frac{M_A^{0'}}{M_B^0} \times \frac{M_A^{0'} - M_C^0}{M_C^0 - M_B^0} + m_C \frac{M_A^{0'}}{M_C^0} \times \frac{M_B^0 - M_A^{0'}}{M_C^0 - M_B^0} = b^0(M_i^0, m_i^0) \pm \sigma \tag{C.24}$$

$$\text{avec } b^0(M_i^0, m_i^0) = m_A^{0'} + m_B^0 \frac{M_A^{0'}}{M_B^0} \times \frac{M_A^{0'} - M_C^0}{M_C^0 - M_B^0} + m_C^0 \frac{M_A^{0'}}{M_C^0} \times \frac{M_B^0 - M_A^{0'}}{M_C^0 - M_B^0}$$

$\sigma$  n'est autre que l'incertitude sur  $m_A^{0'}$ .

Chaque série de mesures peut donc être représentée par une relation linéaire entre les masses des trois isotopes qui composent sa séquence (A,B,C) avec au second membre, une quantité  $b^0(M_i^0, m_i^0)$  qui contient toute l'information expérimentale (dédue des masses d'essai  $m_B^0$  et  $m_C^0$  et du résultat expérimental  $m_A^{0'} \pm \sigma$  des tableaux 5 et 7 à 11).

Les masses de référence venant des tables [Wap 77] sont tout simplement introduites sous forme d'équations, et l'ensemble des équations ainsi obtenues peut alors être traité par la méthode des moindres carrés.

## b - Rappels sur la Méthode des Moindres Carrés

L'ensemble des équations (C.24) et de celles exprimant les masses de référence peut s'écrire :

$$\sum_j k_{jm}^i = b_i^0 \quad (C.25)$$

avec une incertitude  $\sigma_i$  sur  $b_i^0$  ( $i = 1$  à  $M$  représente les  $M$  équations, et  $j = 1$  à  $N$ , les  $N$  masses inconnues). On a évidemment  $M > N$ . En notation matricielle, (C.25) s'écrit (les lettres minuscules représentant des vecteurs-lignes ou des vecteurs-colonnes) :

$$K_m = b^0 \quad (C.25bis)$$

avec l'incertitude  $\sigma$  sur  $b^0$ .  $K$  est une matrice rectangulaire ( $M, N$ ) de rang  $N$ .

La résolution d'un tel système par la méthode des moindres carrés est brièvement décrite à l'appendice 5. Une excellente présentation en est donnée par Y.V.LINNIK dans [Lin 63] au chapitre VI "Mesures Indirectes et Non Conditionnelles", ainsi que dans la thèse de K.BOS ([Bos 78] et la référence qui y est citée : [Wes 68]).

Les masses ajustées sont notées  $\tilde{m}$ . On en déduit les quantités  $\tilde{b} = K\tilde{m}$ , d'où, pour chaque équation, son degré de cohérence :

$$Coh_i = \frac{\tilde{b}_i - b_i^0}{\sigma_i} \quad (C.26)$$

## c - Résultats

### Ensemble des Données

Nous prenons en considération l'ensemble des données présentées dans les tableaux 7 à 11, à l'exception, dans "Rb légers", de trois séquences (83-85-87, 82-83-85 et 81-83-85) qui font intervenir les isotopes  $^{85}\text{Rb}$  et  $^{87}\text{Rb}$ , étant donné leur contamination. Ces trois séquences n'auraient d'ailleurs servi qu'à déterminer le mélange isotope + contamination pour  $^{85}\text{Rb}$  et  $^{87}\text{Rb}$ .



Dans le tissu des "Cs légers" (tableau 9), des problèmes d'empilement liés au temps mort du système d'acquisition ont pu être pris en compte et corrigés pour les séries 27 à 32. Dans les séries 35, 36 et 37, par contre, cet empilement était trop important pour qu'une correction puisse avoir un sens : elles ont donc dû être rejetées.

Dans "Cs lourds" (tableau 10), seule la série 17 (séquence 139-144-146) a dû être rejetée, la contamination à la masse  $^{146}\text{Cs}$  n'ayant pu y être résolue. Toutefois, l'optimisation du spectromètre au cours de la série 18, sur  $^{147}\text{Cs}$  a permis de mesurer  $^{146}\text{Cs}$  dans de bonnes conditions dans les séries de mesures 19 et 28. Nous reviendrons sur ce sujet lors de la discussion sur les isobares (§ C-V-2 ; p.103).

Pour des raisons qui ne sont pas très claires à l'heure actuelle, nous avons dû prendre en compte une variation de la masse de  $^{94}\text{Rb}$  au cours de l'expérience sur les isotopes riches en neutrons de Rb. Nous en sommes amenés à affecter  $^{94}\text{Rb}$  d'une valeur de masse lorsqu'il apparaît dans les séries de mesures n° 12, 17, 18, 20 et 21, et d'une autre valeur, différente, dans les séries n° 25, 26, 27 et 33, soit donc deux inconnues (notées 94 et 394) pour l'isotope  $^{94}\text{Rb}$ . Cette variation semble correspondre à un accroissement important de la température de l'ioniseur au cours de la série n° 24. Etant donné qu'aucun isomère n'a été observé dans les autres expériences réalisées à ISOLDE [Eks78b], [Thi 81], pour  $^{94}\text{Rb}$ , la seule explication qui reste plausible, serait une contamination par un isobare naturel ou un composé chimique.

Enfin, et cela tombe sous le sens, ont été considérées comme inconnues, les masses connues de tous les isotopes pour lesquels existe un état isomérique, c'est-à-dire  $^{81,82}\text{Rb}$  et  $^{130}\text{Cs}$ , même si a priori ils peuvent paraître vierges de toute contamination. La détermination de leur masse ne pourra servir, a posteriori, qu'à déterminer leur degré de contamination. Ceux d'entre eux qui interviennent dans des tissus de mesures différents, faisant intervenir des mécanismes de formation différents (c'est le cas pour  $^{81}\text{Rb}$  et  $^{82}\text{Rb}$  dans les tissus "Rb légers" et "Rb lourds"), seront découplés dans le traitement global, c'est-à-dire que deux masses inconnues différentes (notées 81 et 381, 82 et 382) seront considérées pour chacun d'eux.

**TABEAU 14** : Résolution du système de 60 équations à 28 inconnues, qui représente l'ensemble des données (références et séries de mesures) relatives aux masses des isotopes de Rb.

Références et Séquences	$m_A^0$	$\sigma$	$b^0$	$\tilde{b}$	Coh	Rb	$\tilde{m}$	$\tilde{\sigma}$
80	-72190	23.	-72190.	-72190.	.00	74	-51980	371
83	-78987	32.	-78987.	-79003.	-.51	75	-57487	188
85	-82159	3.	-82159.	-82159.	.08	76	-60760	147
87	-84596	3.	-84596.	-84596.	.03	77	-65098	105
88	-82600	12.	-82600.	-82603.	-.24	78	-67059	67
89	-81717	13.	-81717.	-81716.	.05	79	-70918	43
76 77 79	-60541	105.	1447.	1509.	.59	80	-72190	23
77 79 80	-64808	78.	3497.	3310.	-2.39	81	-75466	25
79 81 83	-70898	51.	1088.	1093.	.10	381	-75311	70
80 82 83	-72479	69.	-1686.	-1699.	-.18	82	-76121	30
80 81 83	-72178	40.	1529.	1540.	.28	382	-76038	52
78 79 80	-67012	48.	2578.	2600.	.47	83	-79003	28
77 78 79	-65217	79.	-1887.	-1830.	.72	84	-79269	42
79 80 81	-70844	57.	-1858.	-1952.	-1.66	85	-82159	3
79 80 82	-70900	56.	-682.	-656.	.47	87	-84596	3
78 79 82	-67079	38.	2074.	2170.	2.52	88	-82603	10
78 81 82	-66512	133.	6611.	6407.	-1.53	89	-81716	12
78 79 81	-67009	45.	1648.	1640.	-.17	90	-79272	22
75 76 78	-57394	56.	258.	215.	-.77	91	-77806	29
76 77 78	-60296	38.	2463.	2409.	-1.41	92	-74864	34
76 77 79	-60448	56.	1541.	1509.	-.56	93	-72779	48
74 75 76	-51903	338.	2229.	2307.	.23	94	-68769	59
74 75 77	-51728	555.	2038.	1827.	-.38	394	-68505	61
75 76 77	-57589	60.	-940.	-977.	-.61	95	-65915	72
75 77 79	-57241	68.	1891.	2003.	1.66	96	-61251	85
381 83 85	-75279	42.	597.	597.	.00	97	-58401	102
381 382 83	-75674	45.	-2197.	-2197.	.00	98	-54196	121
83 85 87	-79065	62.	681.	742.	.99	99	-50872	183
83 84 87	-79640	47.	-1475.	-1475.	.00			
85 89 90	-82165	116.	8493.	8565.	.63			
85 89 92	-82062	53.	7764.	7698.	-1.25			
85 90 92	-82122	79.	6975.	6938.	-.47			
85 90 91	-82370	138.	3580.	3661.	.59			
85 91 92	-82291	166.	11209.	11522.	1.88			
85 88 92	-82158	38.	5557.	5579.	.58			
87 88 89	-84540	46.	-1097.	-1147.	-1.08			
89 92 94	-81752	59.	1704.	1664.	-.68			
89 90 92	-81728	35.	-338.	-341.	-.09			
89 93 95	-83220	73.	3770.	3702.	-.93			
89 93 96	-82504	60.	4994.	5053.	.99			
89 95 96	-79272	212.	9999.	9777.	-1.05			
89 94 96	-81544	107.	4095.	4182.	.81			
90 94 95	-80104	132.	242.	150.	-.70			
90 93 95	-80488	58.	3188.	3120.	-1.17			
90 93 94	-80791	97.	4879.	4899.	.21			
90 92 94	-79352	45.	1331.	1352.	.46			
90 91 93	-79071	34.	944.	936.	-.24			
91 92 93	-77507	45.	-940.	-917.	.52			
91 92 95	-77942	31.	-140.	-120.	.66			
91 394 96	-78223	61.	949.	890.	-.96			
91 394 97	-78323	48.	14.	37.	.47			
91 394 98	-78338	60.	437.	499.	1.02			
92 95 96	-73731	105.	4210.	4350.	1.33			
92 96 97	-75371	159.	-2958.	-2931.	.17			
93 95 97	-72171	48.	388.	279.	-2.26			
93 97 98	-73069	279.	1363.	1446.	.30			
93 97 99	-72709	278.	-260.	-386.	-.45			
394 96 98	-68796	66.	-583.	-540.	.65			
95 97 98	-65793	144.	823.	595.	-1.58			
95 98 99	-66286	683.	-2708.	-2211.	.73			

$$\begin{aligned} \chi^2 &= 54 \\ M-N &= 32 \\ WVF &= 1.29 \end{aligned}$$

TABLEAU 15 : Résolution du système de 65 équations à 28 inconnues, qui représente l'ensemble des données (références et séries de mesures) relatives aux masses des isotopes de Cs.

Références et Séquences	$m_A^o$	$\sigma$	$b^o$	$\tilde{b}$	Coh	Cs	$\tilde{m}$	$\tilde{\sigma}$
125	-84040	40.	-84040.	-84032.	.20	117	-65485	239
127	-86206	21.	-86206.	-86221.	-.70	118	-67636	192
128	-85935	6.	-85935.	-85933.	.27	119	-71677	157
129	-87563	24.	-87563.	-87579.	-.65	120	-73356	128
131	-88066	8.	-88066.	-88065.	.14	121	-76700	104
132	-87175	23.	-87175.	-87178.	-.12	122	-77742	81
137	-86560	7.	-86560.	-86560.	-.01	123	-80810	67
139	-80630	70.	-80630.	-80634.	-.05	124	-81525	50
128 131 132	-85966	131.	4626.	4647.	.16	125	-84032	34
117 118 119	-65461	102.	-1748.	-1840.	-.90	126	-84270	26
117 118 120	-65589	184.	-697.	-654.	.23	127	-86221	18
124 126 128	-81437	61.	1162.	1094.	-1.11	128	-85933	6
117 119 120	-65660	138.	2760.	2894.	.97	129	-87579	17
118 119 120	-67617	68.	2418.	2385.	-.48	130	-86799	32
118 119 121	-67625	50.	1604.	1581.	-.45	131	-88065	8
118 120 121	-67655	93.	-851.	-838.	.14	132	-87178	20
119 120 121	-71617	59.	-1585.	-1627.	-.71	134	-86557	231
119 120 124	-71644	39.	-318.	-307.	.27	137	-86560	7
120 121 124	-73267	42.	1783.	1771.	-.28	138	-82866	37
120 123 124	-73199	123.	5360.	5321.	-.31	139	-80634	66
121 123 126	-76609	50.	1847.	1845.	-.03	140	-76991	79
121 124 126	-76659	75.	755.	792.	.50	141	-74405	89
122 124 126	-77672	60.	1089.	1084.	-.08	142	-70463	104
122 124 128	-77665	46.	1643.	1622.	-.45	143	-67675	123
122 126 128	-77776	97.	3171.	3235.	.66	144	-63293	141
123 126 128	-80795	77.	976.	985.	.12	145	-60081	162
123 124 128	-80775	57.	-383.	-371.	.21	146	-55656	197
123 124 126	-80720	49.	-604.	-642.	-.79	147	-52484	294
124 125 128	-81530	42.	1878.	1874.	-.11			
124 125 126	-81581	61.	2231.	2263.	.52			
126 127 128	-84175	62.	2287.	2222.	-1.04			
126 128 129	-84272	94.	-1551.	-1585.	-.36			
126 128 131	-84273	52.	244.	245.	.01			
128 129 131	-85792	48.	1510.	1393.	-2.45			
119 120 122	-71691	79.	-530.	-477.	.67			
125 129 130	-84095	212.	6051.	6435.	1.81			
128 130 132	-86143	70.	377.	459.	1.16			
130 131 134	-86687	67.	1732.	1732.	.00			
131 139 140	-86283	344.	19646.	19453.	-.56			
131 139 141	-88040	196.	14985.	15330.	1.76			
131 140 141	-89988	389.	9400.	10167.	1.97			
132 140 142	-87844	181.	13898.	13719.	-.99			
132 139 142	-87034	116.	15219.	15167.	-.45			
132 139 141	-86674	166.	13731.	13555.	-1.06			
132 139 140	-85889	293.	17079.	17192.	.39			
139 142 145	-80899	91.	-398.	-282.	1.27			
139 142 144	-80752	107.	261.	156.	-.99			
139 140 142	-80872	56.	-404.	-458.	-.97			
139 141 142	-81137	122.	1165.	1459.	2.41			
139 141 143	-80668	84.	409.	280.	-1.54			
139 144 145	-80751	312.	-2302.	-2036.	.86			
140 145 147	-80169	562.	671.	1066.	.70			
140 145 146	-77868	431.	3596.	4191.	1.38			
140 141 142	-77161	72.	1269.	1286.	.24			
140 143 145	-76972	188.	1820.	1623.	-1.05			
140 143 144	-77237	201.	3528.	3407.	-.60			
141 142 144	-74505	57.	-440.	-440.	.00			
141 143 145	-74585	86.	572.	625.	.61			
141 144 147	-74736	481.	-84.	-803.	-1.49			
142 143 144	-70435	91.	1687.	1518.	-1.85			
143 144 145	-67550	88.	-1197.	-1217.	-.24			
143 144 146	-67447	73.	-484.	-651.	-2.28			
137 141 142	-87118	197.	2727.	2965.	1.21			
137 138 139	-86471	69.	-1538.	-1499.	.56			
137 138 142	-86440	47.	-693.	-722.	-.62			

$$\chi^2 = 59$$

$$M-N = 37$$

$$WVF = 1.26$$

**TABEAU 16** : Résolution du système de 44 équations à 19 inconnues, qui représente l'ensemble des données (références et séries de mesures) relatives aux masses des isotopes de Fr.

Références et Séquences	$m_A^{o'}$	$\sigma$	$b^o$	$\nu_b$	Coh	Fr	$\nu_m$	$\nu_\sigma$
211	-4220	50.	-4220.	-4200.	.40	204	955	503
213	-3556	11.	-3556.	-3557.	-.13	205	-1287	117
220	11470	8.	11470.	11470.	.05	206	-1359	87
221	13265	12.	13265.	13266.	.06	207	-2974	75
222	16338	50.	16338.	16322.	-.31	208	-2711	53
223	18382	4.	18382.	18382.	-.01	209	-3835	44
213 221 225	-3930	177.	3170.	3193.	.13	210	-3389	42
212 213 222	-3528	65.	2133.	2066.	-1.02	211	-4200	35
212 213 223	-3567	67.	2069.	2043.	-.39	212	-3595	31
211 212 213	-4119	105.	-543.	-569.	-.24	213	-3557	11
210 212 220	-3244	69.	3900.	3791.	-1.59	220	11470	8
210 213 222	-3501	74.	6310.	6419.	1.47	221	13266	12
210 211 213	-3374	83.	1243.	1127.	-1.39	222	16322	41
209 211 221	-3868	70.	3650.	3659.	.14	223	18382	4
209 213 220	-3732	83.	7959.	7858.	-1.21	224	21202	48
209 212 220	-3872	75.	5037.	5113.	1.01	225	23832	66
209 210 211	-3742	104.	-1161.	-1251.	-.86	226	27154	108
208 210 220	-2721	69.	3480.	3480.	.00	227	29664	149
208 211 220	-2795	86.	6354.	6412.	.67	228	32394	654
208 212 220	-2646	81.	8008.	7985.	-.28			
208 209 213	-2644	71.	1214.	1191.	-.32			
208 209 210	-2672	108.	1524.	1565.	.37			
207 209 213	-2924	89.	992.	995.	.04			
207 208 209	-3083	109.	-1433.	-1377.	.52			
206 208 213	-1421	84.	975.	1025.	.59			
206 208 211	-1316	89.	427.	383.	-.50			
206 207 208	-1521	118.	1780.	1874.	.80			
206 207 212	-1533	84.	1371.	1494.	1.46			
205 207 211	-1044	150.	1381.	1090.	-1.94			
205 206 212	-1358	150.	-398.	-289.	.73			
205 206 207	-1502	180.	-1857.	-1531.	1.81			
205 209 212	-1196	151.	2901.	2855.	-.30			
220 222 224	11548	137.	-42.	-57.	-.11			
220 223 226	11473	158.	1578.	1628.	.32			
221 223 224	13213	199.	333.	449.	.58			
221 224 225	12578	312.	-204.	-184.	.06			
221 225 226	14780	480.	2831.	2429.	-.84			
221 224 227	13299	162.	438.	307.	-.81			
223 224 225	17979	160.	-369.	-212.	.98			
224 225 226	21479	170.	521.	663.	.84			
220 225 227	11635	433.	1404.	1781.	.87			
220 223 224	11750	284.	1582.	1397.	-.65			
220 224 228	10726	623.	1075.	1075.	.00			
204 207 213	897	491.	3647.	3647.	.00			

$$\begin{aligned}\chi^2 &= 28 \\ M-N &= 25 \\ WVF &= 1.06\end{aligned}$$

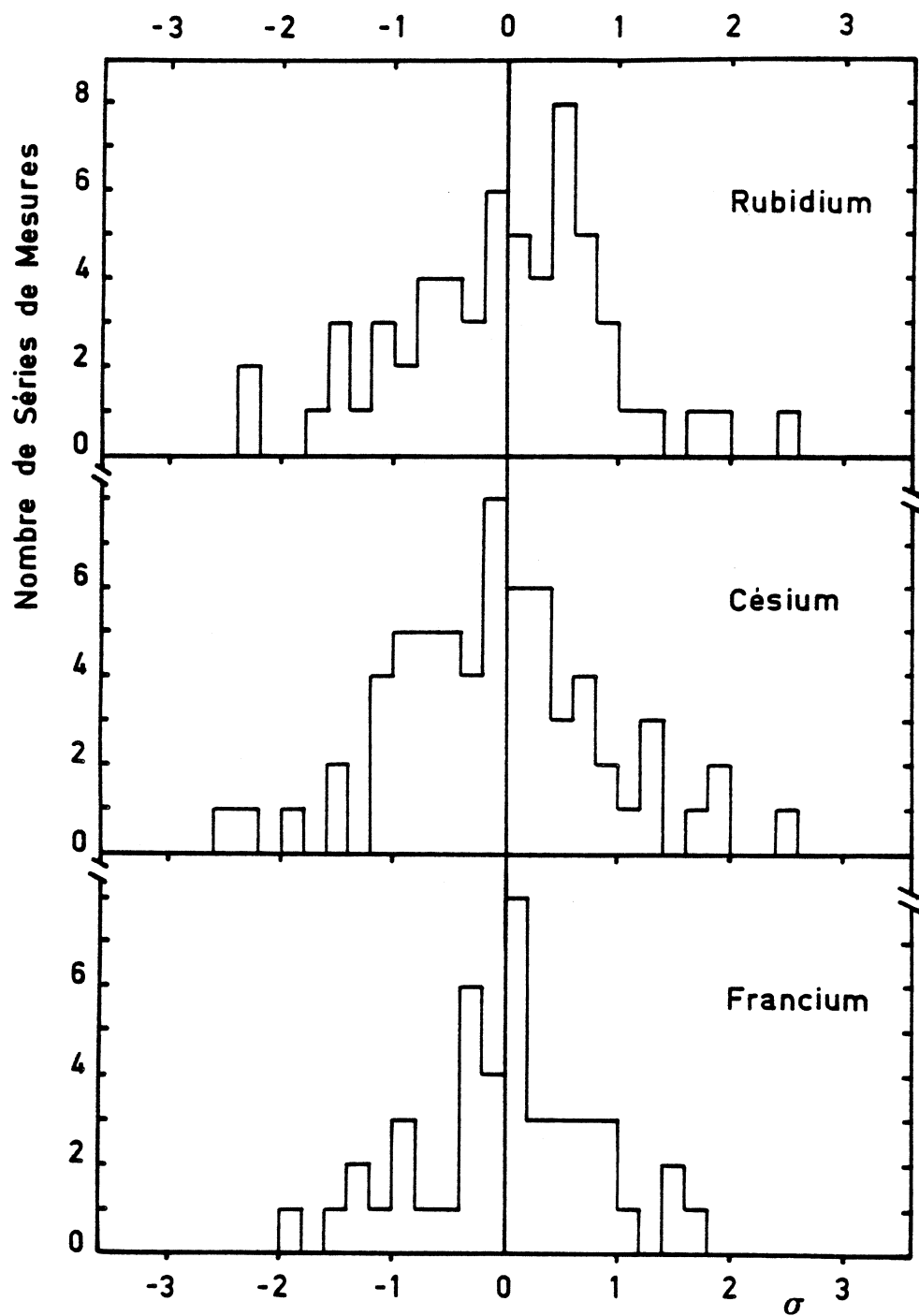


Figure 21 - Dispersion des résultats par rapport aux valeurs ajustées, pour chacun des systèmes d'équations présentés dans les tableaux 14, 15 et 16.

### Résolution du système

Les tableaux 14, 15 et 16 présentent, respectivement pour les éléments Rb, Cs et Fr, les résultats obtenus. Pour chaque équation, les valeurs de  $m_{A_i}^0$  et de son écart-type  $\sigma_i$ , évaluées à partir des "masses d'essai" sont d'abord rappelées. Nous donnons ensuite les valeurs des  $b_i^0$  obtenues par l'équation (C.24), les valeurs ajustées  $\tilde{b}_i$  et les facteurs de cohérence  $\text{Coh}_i$ . Dans ces tableaux figurent également les  $\tilde{m}_i$  ajustés et leur incertitude  $\tilde{\sigma}_i$  ainsi que le "WVF" (Weighted Variance of Fit) de l'ajustement, défini par :

$$\text{WVF} = \sqrt{\frac{\chi^2}{M-N}} \quad \text{avec} \quad \chi^2 = \sum_i (\text{Coh}_i)^2 \quad (\text{C.27})$$

$M-N$  étant le nombre de degrés de liberté du système. On peut remarquer que  $\chi^2$  est la quantité (à un facteur 2 près) minimisée dans l'équation (Ap6.6).

Une présentation visuelle de la dispersion des résultats, par rapport aux valeurs ajustées, est donnée par la figure 21. Les distributions sont compatibles avec une loi normale.

#### *d - Stabilité des Résultats*

Les résultats que nous venons de présenter, sont basés sur un certain nombre de masses de référence pour lesquelles nous avons supposé correctes les incertitudes qui leur sont attachées.

On peut s'attendre à ce qu'à l'avenir ces masses de référence soient mesurées avec une plus grande précision\*. Nos résultats gagneront alors, eux aussi, en précision. Mais si les nouvelles masses de référence variaient au-delà des limites définies par leurs anciennes barres d'erreur, nos résultats pourraient également varier de façon importante.

Cependant, on peut penser que dans un ensemble de mesures donné, toutes les masses de référence n'ont pas la même influence sur les résultats, soit parce qu'elles interviennent plus ou moins fréquemment, soit parce qu'elles occupent quelque position stratégique dans l'ensemble des

---

\*C'est d'ores et déjà le cas, cf. § g.

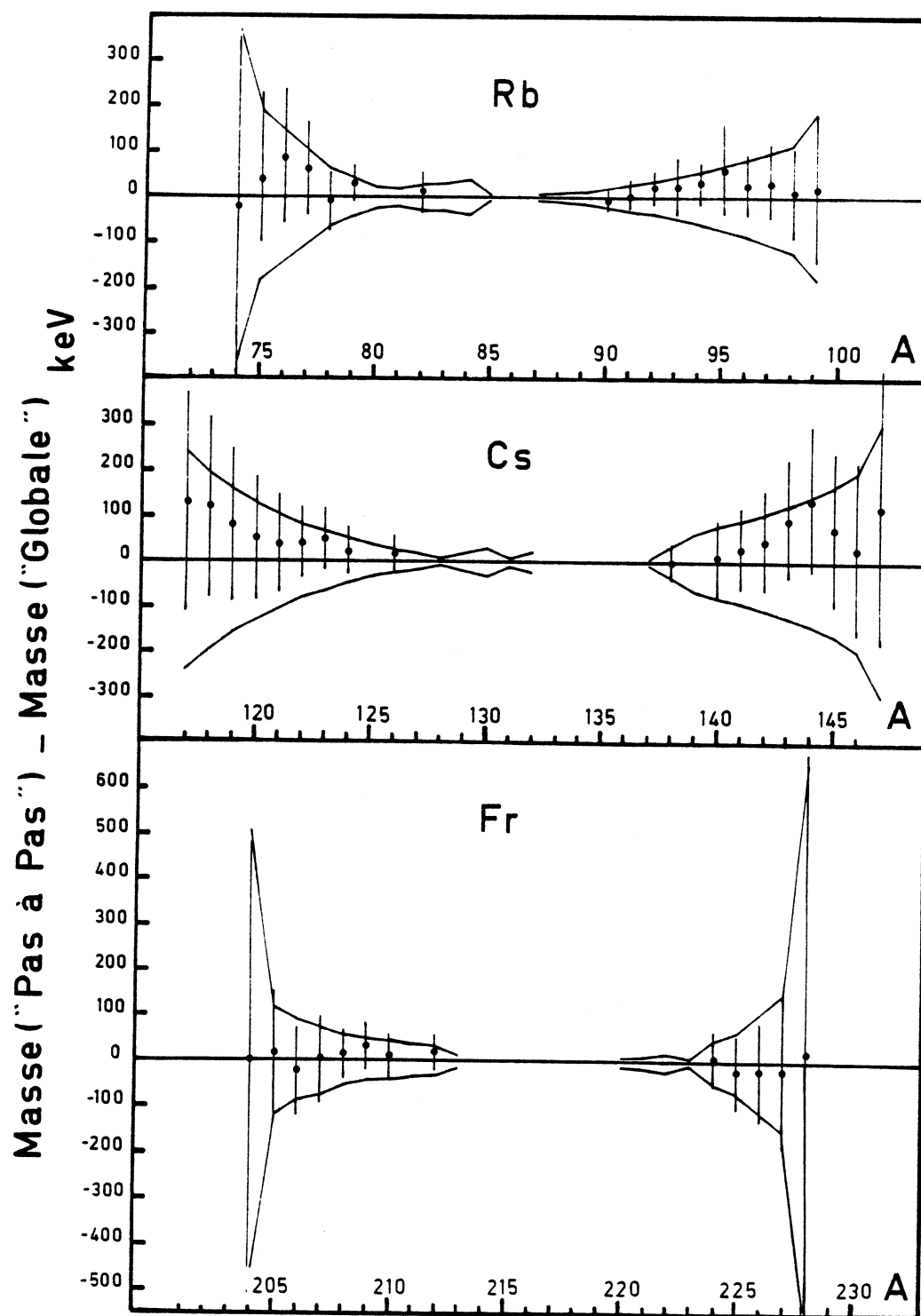


Figure 22 - Comparaison entre les résultats obtenus par la méthode "Pas à Pas" et ceux obtenus par la méthode globale. Ces derniers sont portés par la droite d'ordonnée nulle, et leurs barres d'erreur sont enveloppées par la ligne continue. Les points et les barres d'erreur portées par ces points représentent les résultats de la méthode de "Pas à Pas".

séquences, soit encore parce que leur barre d'erreur leur donne des poids statistiques plus ou moins élevés.

Afin d'évaluer l'influence de chaque masse de référence sur les résultats, c'est-à-dire d'étudier la stabilité de ces derniers, nous faisons varier successivement chaque masse de référence d'une quantité égale à sa barre d'incertitude ( $1 \sigma$ ), tout en lui conservant cette dernière.

Nous constatons que ces variations n'entraînent, en général, que des changements minimes des masses mesurées, à quelques exceptions près : des variations de  $1 \sigma$  de  $^{83}\text{Rb}$  dans les "Rb légers" et de  $^{89}\text{Rb}$  dans les "Rb lourds" entraînent, pour les masses mesurées, des écarts allant jusqu'à, respectivement, 0.6 fois et 0.5 fois les barres d'erreur de ces dernières ; des variations de  $1 \sigma$  de  $^{125}\text{Cs}$  ("Cs légers") et de  $^{139}\text{Cs}$  ("Cs lourds") entraînent des écarts des masses mesurées jusqu'à, respectivement,  $0.6 \sigma$  et  $0.9 \sigma$  ; enfin, pour le francium, une variation de  $1 \sigma$  de  $^{211}\text{Fr}$ , donne, pour les masses des isotopes déficient en neutrons, des écarts allant jusqu'à  $0.4 \sigma$ .

En conclusion, les points les plus sensibles sur nos résultats, sont les masses de référence de  $^{83}\text{Rb}$  et  $^{89}\text{Rb}$  pour le rubidium, de  $^{125}\text{Cs}$  et surtout de  $^{139}\text{Cs}$ , pour le césium. Nous verrons un peu plus loin (§ g : "Résultats Actualisés") que la meilleure estimation que l'on ait à l'heure actuelle pour ce dernier isotope est :  $m(^{139}\text{Cs}) = -80711 \pm 8 \text{ keV}$ . En la comparant à celle du tableau 12, nous constatons que non seulement sa valeur s'est déplacée de 1,2 fois sa barre d'erreur, mais que surtout cette dernière a été divisée par 9 !, ce qui entraîne fatalement une modification importante des résultats des isotopes de Cs riches en neutrons. De telles différences, qui sont particulièrement sensibles du point de vue métrologique, le sont heureusement moins du point de vue de l'interprétation physique. En effet, comme nous l'avons souligné dans l'introduction, ce sont les variations des énergies de liaison entre isotopes voisins qui sont essentielles dans ce dernier cas. Les changements dans les masses de référence entraînent généralement des mouvements d'ensemble qui affecteront donc peu les résultats physiques.

#### e - Comparaison avec la Méthode "Pas à Pas"

Les résultats, présentés dans les tableaux 14, 15 et 16 sont comparés sur la figure 22 à ceux venant de la méthode "Pas à Pas". Les deux ensembles



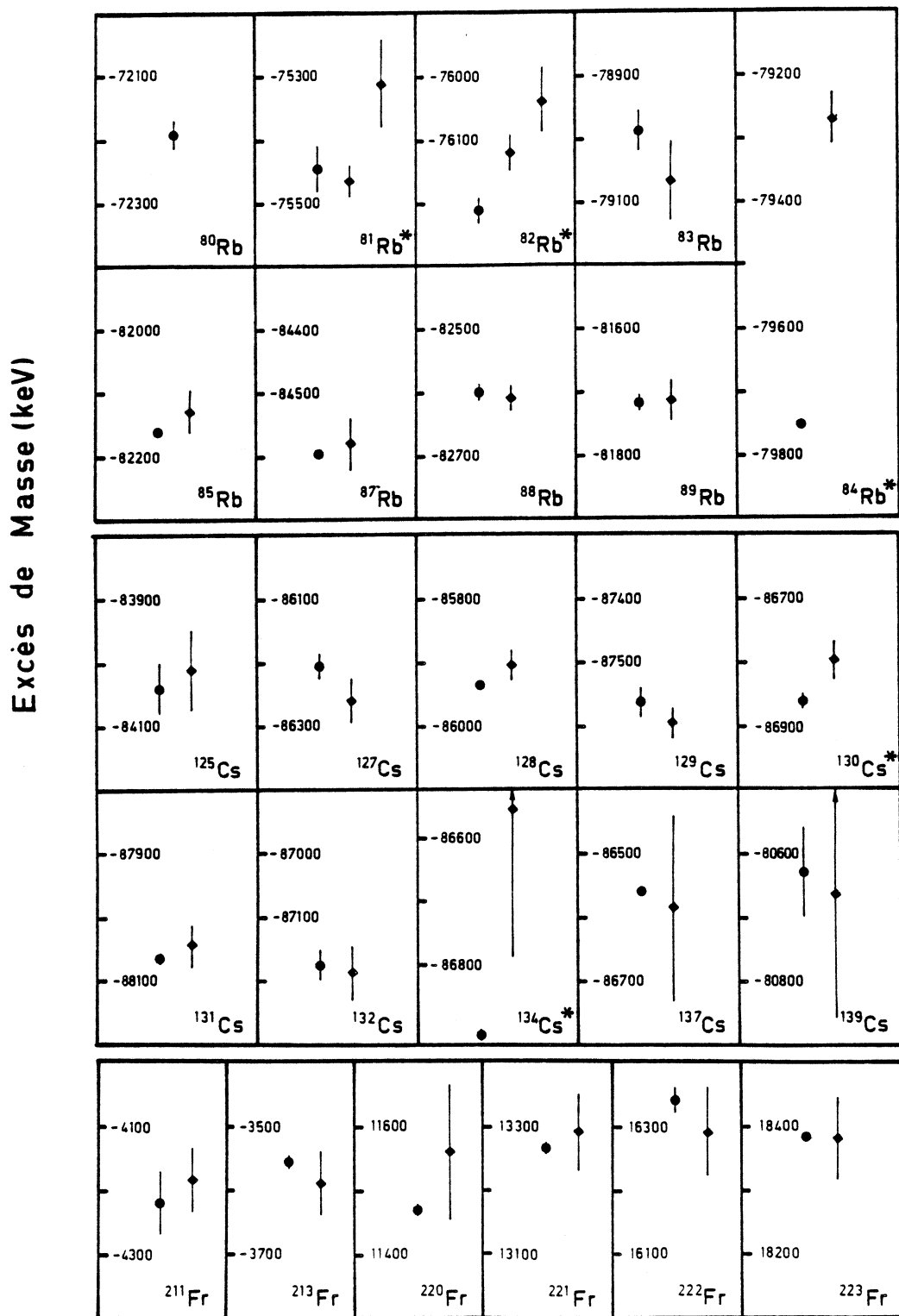


Figure 23 - Comparaison entre les "masses connues" redéterminées à partir de nos données expérimentales (losanges) et les valeurs des tables [Wap 77] pour ces mêmes isotopes (points). Les isotopes marqués d'un astérisque sont ceux pour lesquels une contamination isomérique pourrait exister; dans ce cas, le désaccord signerait la contribution de l'isomère à la masse mesurée.

sont très cohérents par rapport aux barres d'erreur, et les rares cas où la différence atteint 100 keV n'auront pas grande influence sur l'interprétation physique qui sera faite au chapitre E.

En conclusion, on observe que, bien que la première méthode ne soit pas parfaite, elle conduit à des résultats en très bon accord avec la seconde. Ceci reste vrai également pour l'estimation des barres d'erreur comme on peut le voir sur la figure 22.

#### *f - Redétermination de Masses Connues*

Un autre avantage que l'on peut tirer de la souplesse d'utilisation (sur l'UNIVAC d'Orsay) de la seconde méthode, outre l'étude de la stabilité des résultats, réside en la mesure des masses déjà connues, afin de vérifier le bien-fondé de la méthode.

Chaque masse de référence est, à tour de rôle, supposée inconnue et déterminée à partir du système d'équations restant. La valeur, qui est ainsi déduite, est comparée, sur les figures 23 a, b et c à la masse de référence elle-même. Sur ces figures sont également comparées la masse mesurée et celle donnée par les tables [Wap 77] pour chaque isotope ayant un isomère (marqué d'un astérisque).

On observe un bon accord pour toutes les masses de référence (à l'exception de  $^{80}\text{Rb}$ , pour lequel on ne peut estimer la masse : avec  $^{80}\text{Rb}$  inconnu, le système devient singulier). En ce qui concerne les isotopes avec isomères, les masses mesurées sont toujours moins liées que les masses connues (sauf pour  $^{81}\text{Rb}$  produit par spallation pour lequel il y a accord).

La cohérence de ces résultats renforce la confiance que l'on peut avoir dans la méthode expérimentale.

#### *g - Résultats Actualisés*

Les valeurs, les plus récentes, des masses de référence, qui nous ont été communiquées par A.H.WAPSTRA sont présentées dans le tableau 17. Les résultats obtenus avec ces valeurs sont regroupés dans le tableau 18, et comparés, sur la figure 24 à ceux présentés plus haut.

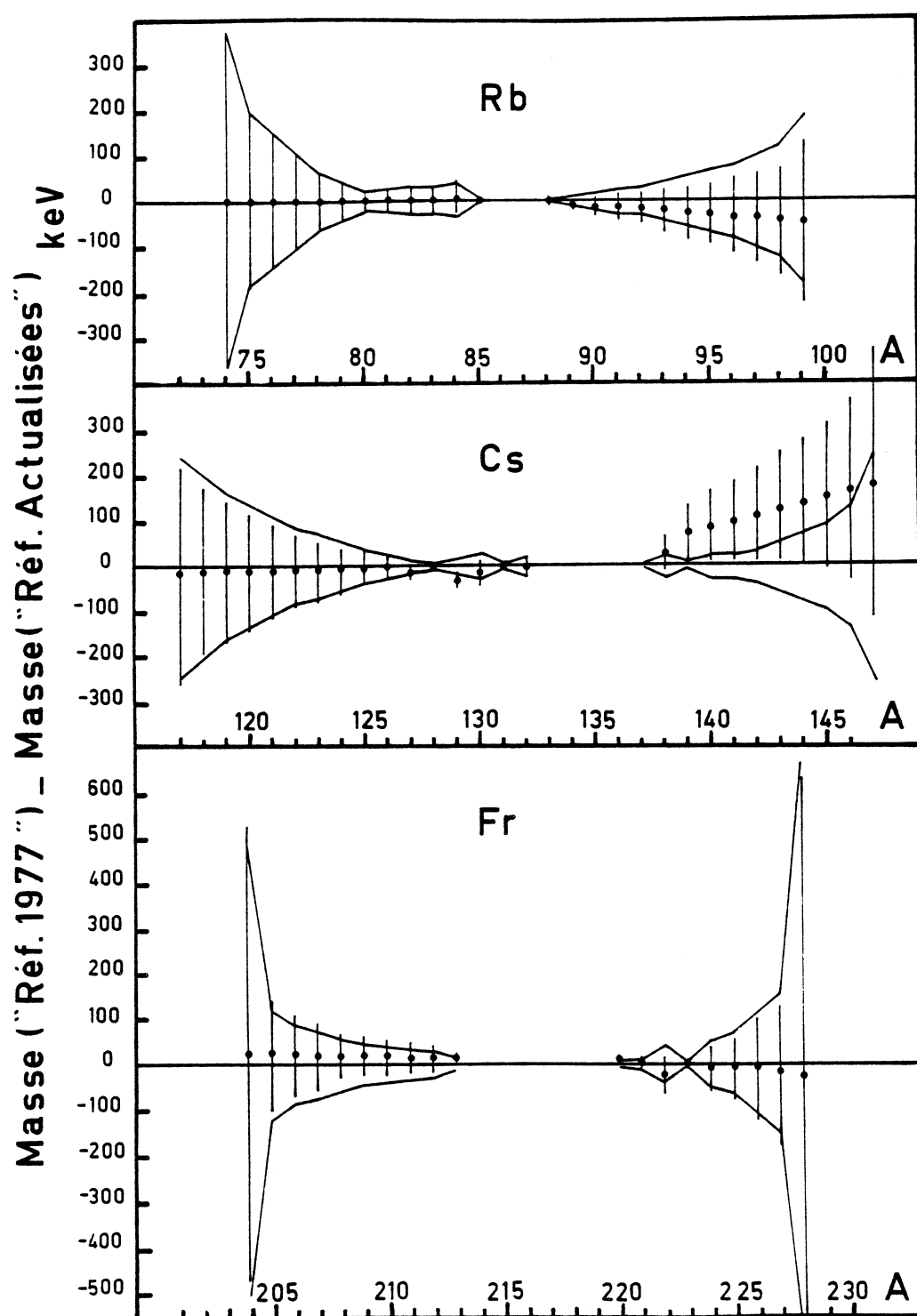


Figure 24 - Comparaison entre les résultats utilisant les masses de référence prises dans les tables de 1977 [Wap 77] et ceux utilisant les masse de référence actualisées. Ces dernières sont portées par la droite d'ordonnée nulle, et leurs barres d'erreur sont enveloppées par la ligne continue. Les points et les barres d'erreur portées par ces points représentent les résultats qui utilisent les anciennes masses de référence.

Dans les cas du rubidium, du francium et des "césium légers", nous observons de très faibles variations des résultats. Pour les "césium lourds", ainsi que nous en avons fait état au § d ("Stabilité des Résultats"), la très forte variation de la masse de  $^{139}\text{Cs}$ , qui est une masse de référence influente, entraîne une modification notable de nos valeurs.

TABLEAU 17 : Masses de Référence actualisées (en keV)

$^{80}\text{Rb}$	$-72191 \pm 22$	$^{125}\text{Cs}$	$-84037 \pm 45$	$^{211}\text{Fr}$	$-4233 \pm 51$
$^{83}\text{Rb}$	$-78985 \pm 32$	$^{127}\text{Cs}$	$-86207 \pm 10$	$^{213}\text{Fr}$	$-3572 \pm 10$
$^{85}\text{Rb}$	$-82163 \pm 3$	$^{128}\text{Cs}$	$-85935 \pm 6$	$^{220}\text{Fr}$	$11459 \pm 7$
$^{87}\text{Rb}$	$-84599 \pm 3$	$^{129}\text{Cs}$	$-87524 \pm 15$	$^{221}\text{Fr}$	$13265 \pm 11$
$^{88}\text{Rb}$	$-82597 \pm 5$	$^{131}\text{Cs}$	$-88070 \pm 8$	$^{222}\text{Fr}$	$16379 \pm 50$
$^{89}\text{Rb}$	$-81706 \pm 9$	$^{132}\text{Cs}$	$-87175 \pm 23$	$^{223}\text{Fr}$	$18381 \pm 4$
		$^{137}\text{Cs}$	$-86559 \pm 7$		
		$^{139}\text{Cs}$	$-80711 \pm 8$		

TABLEAU 18 : Résultats actualisés, obtenus par la méthode "Globale" et en utilisant les masses de référence actualisées du tableau 17

Rb	$\sim m$	$\sim \sigma$	Cs	$\sim m$	$\sim \sigma$	Fr	$\sim m$	$\sim \sigma$
74	-51984	370	117	-65470	242	204	930	503
75	-57491	188	118	-67624	196	205	-1311	117
76	-60763	146	119	-71666	161	206	-1381	87
77	-65100	105	120	-73344	132	207	-2995	75
78	-67061	66	121	-76691	107	208	-2732	53
79	-70920	42	122	-77734	83	209	-3855	44
80	-72191	22	123	-80803	69	210	-3409	42
81	-75466	24	124	-81519	52	211	-4217	35
381	-75306	70	125	-84026	36	212	-3612	31
382	-76121	30	126	-84267	26	213	-3573	10
382	-76035	52	127	-86211	10	220	11459	7
83	-79003	28	128	-85932	6	221	13266	11
84	-79269	42	129	-87544	13	222	16348	41
85	-82163	3	130	-86786	31	223	18381	4
87	-84599	3	131	-88068	8	224	21212	48
88	-82598	5	132	-87177	20	225	23843	66
89	-81706	9	134	-86611	231	226	27167	108
90	-79257	20	137	-86559	7	227	29684	149
91	-77788	27	138	-82897	26	228	32425	654
92	-74842	31	139	-80711	8			
93	-72753	45	140	-77080	23			
94	-68740	55	141	-74505	26			
394	-68476	56	142	-70579	36			
95	-65882	68	143	-67803	58			
96	-61213	82	144	-63434	75			
97	-58360	99	145	-60236	94			
98	-54150	117	146	-55826	136			
99	-50822	181	147	-52667	250			

## V - ISOMERES ET CONTAMINATIONS

Nous prenons ici le terme de "contamination" dans son sens le plus large : il s'agit de tout faisceau qui peut apparaître (au niveau de la fente de sortie FS du spectromètre) au voisinage immédiat de celui qui correspond à l'isotope étudié dans son état fondamental.

Les isomères sont un cas particulier de contamination, mais l'on peut aussi avoir des contaminations par des isobares, des hydrocarbures ou même par l'isotope lui-même, (par exemple, s'il s'agit d'un isotope stable émis par la source du spectromètre à partir d'une origine différente ou dans des conditions différentes des faisceaux provenant d'ISOLDE).

### 1) Isomères

Ils posent un problème assez délicat, car leur énergie d'excitation est, en général, assez faible : quelques centaines de keV. Il n'est donc pas possible de les séparer de l'état fondamental des noyaux avec le spectromètre de masse : pour séparer un isomère de 100 keV à la masse  $A = 100$ , il faudrait atteindre une résolution de  $10^6$ . Il n'apparaît pas possible non plus de détecter ni d'évaluer la contribution d'un isomère par l'étude des largeurs des pics : pour un isomère d'énergie d'excitation inférieure à 400 keV, de même abondance que le fondamental, à  $A = 100$  et avec une résolution  $R = 5000$ , l'élargissement obtenu est inférieur aux fluctuations sur la largeur.

Lorsqu'un isomère est produit dans les réactions de fission ou de spallation considérées ici, deux cas peuvent se présenter : s'il s'agit d'un isotope de masse connue, celui-ci ne peut être considéré comme masse de référence, ainsi que nous l'avions souligné plus haut ; s'il s'agit d'un isotope dont la masse a été mesurée, la valeur qui a été donnée dans un des tableaux 14, 15 ou 16 ou au tableau 18 pour les résultats actualisés, contient la contribution éventuelle de l'isomère.

Toutefois, et sans que cela soit vraiment satisfaisant pour l'esprit, des corrections peuvent être parfois estimées pour tenir compte des isomères.

*E et R connus*

C'est particulièrement le cas lorsque l'énergie d'excitation  $E$  de l'isomère est connue ainsi que sa population  $R$  par rapport au fondamental, dans la réaction considérée.  $R$  peut être déterminé par d'autres expériences réalisées dans les mêmes conditions de production à ISOLDE. On a alors :

$$\tilde{m}_{g.s.} = \tilde{m} - \frac{R}{R+1} E \quad (C.28)$$

$\tilde{m}$  et  $\tilde{m}_{g.s.}$  étant respectivement la masse mesurée et celle déduite pour l'état fondamental. L'incertitude supplémentaire sur  $\tilde{m}_{g.s.}$  due à cette correction isomérique est :

$$\sigma_{iso}^2 = \left( \frac{R}{R+1} \right)^2 \sigma_E^2 + \frac{E^2}{(R+1)^4} \sigma_R^2 \quad (C.29)$$

$\sigma_E$  et  $\sigma_R$  étant les incertitudes sur  $E$  et  $R$ .

*E connu, R inconnu*

Lorsque  $E$  est connu, mais non pas le rapport  $R$ , la valeur  $\tilde{m}$  mesurée peut correspondre à n'importe quelle valeur comprise entre  $\tilde{m}_{g.s.}$  et  $\tilde{m}_{g.s.} + E$  avec des probabilités égales. Elle peut donc être représentée par une distribution de probabilité rectangulaire entre ces deux limites. La valeur moyenne d'une telle distribution est :

$$\tilde{m} = \tilde{m}_{g.s.} + 0.5 E \quad (C.30)$$

et son écart-type  $\sigma_{iso} = 0.29 E$ . La correction qui permet de tenir compte de la présence possible de l'isomère est donc :  $- 0.5 E \pm 0.29 E$ .

Le tableau 19 résume la situation pour tous les isotopes ayant un isomère d'énergie  $E$  connue. En dernière colonne sont portées les corrections isomériques et leur incertitude. Le tableau 20 montre que la prise en compte de ces corrections améliore notablement l'accord avec les masses tabulées [Wap 81] lorsque celles-ci existent, à deux exceptions près :  $^{82}\text{Rb}$  de fission pour lequel cet accord est juste acceptable ; et  $^{84}\text{Rb}$ . Pour ce dernier il nous

**TABEAU 19 : Corrections dues à la présence d'isomères**

A		Etat fond.		Isomère		E(keV)	R <sup>a</sup>	Correction Isomérique (keV)
		I <sup>π</sup>	T	I <sup>π</sup>	T			
Rb	78	0 <sup>+</sup>	17.7m <sup>c</sup>	4 <sup>-</sup>	6m <sup>c</sup>	103.4±.1 <sup>b</sup>	2± 1	69±12
	81	3/2 <sup>-</sup>	4.6h <sup>b</sup>	9/2 <sup>+</sup>	32m <sup>b</sup>	85 ± 2 <sup>b</sup>	-	42±25
	82	1 <sup>+</sup>	1.3m <sup>b</sup>	5 <sup>-</sup>	6.2h <sup>b</sup>	82 ±23 <sup>d</sup>	-	41±26
	84	2 <sup>-</sup>	32.9j <sup>b</sup>	6 <sup>-</sup>	21m <sup>c</sup>	464.5±.4 <sup>b</sup>	1±.5	230±60
	86	2 <sup>-</sup>	18.7j <sup>b</sup>	6 <sup>-</sup>	1.02m <sup>b</sup>	556.0±.3 <sup>b</sup>	1±.5	280±70
	90	0 <sup>-</sup>	2.6m <sup>e</sup>	3 <sup>-</sup>	4.3m <sup>e</sup>	106.9±.2 <sup>b</sup>	2± 1	71±12
	98	(0-1)	114ms <sup>f</sup>	(4-5)	96ms <sup>f</sup>	210±180 <sup>g</sup>	-	110±50
Cs	116	(1-3)	.7s <sup>h</sup>	(4-6)	4.1s <sup>h</sup>	-	-	-
	118	2 <sup>i</sup>	14s <sup>j</sup>	(6-8)	17s <sup>j</sup>	400±300 <sup>t</sup>	.05±.03 <sup>a'</sup>	19±18
	119	9/2 <sup>+</sup>	37.7s <sup>k</sup>	3/2 <sup>+</sup>	29s <sup>l</sup>	100± 50 <sup>t</sup>	.5±.25	33±20
	120	2 <sup>m</sup>	64s <sup>j</sup>	fort	57s <sup>j</sup>	300±200 <sup>t</sup>	.05±.03 <sup>a'</sup>	14±12
	121	3/2 <sup>+</sup>	2.6m <sup>n</sup>	9/2 <sup>+</sup>	2.0m <sup>n</sup>	100± 60 <sup>u</sup>	2 ±1	70±40
	122	1	21s <sup>m</sup>	8	4.2m <sup>m</sup>	200±100 <sup>t</sup>	.10±.05	18±12
	123	1/2 <sup>+</sup>	5.9m <sup>b</sup>	11/2 <sup>-</sup>	1.7s <sup>p</sup>	156±1 <sup>p</sup>	.05±.03 <sup>a'</sup>	7± 4
	124	1 <sup>+</sup>	31s <sup>b</sup>	7 <sup>+</sup>	6.3s <sup>q</sup>	461.8±.3 <sup>q</sup>	-	230±130
	130	1 <sup>+</sup>	30m <sup>b</sup>	5	3.7m <sup>m</sup>	-	.2 ±.1	-
	134	4 <sup>+</sup>	2.1a <sup>b</sup>	8 <sup>-</sup>	2.9h <sup>b</sup>	138.7±.1 <sup>b</sup>	-	70±40
	135	7/2 <sup>+</sup>	3×10 <sup>6</sup> a <sup>b</sup>	19/2 <sup>-</sup>	53m <sup>b</sup>	1627 <sup>b</sup>	.10±.05	150±70
	136	5 <sup>+</sup>	13.1j <sup>b</sup>	8 <sup>i</sup>	19s <sup>b</sup>	-	-	-
	138	3 <sup>-</sup>	32.2m <sup>b</sup>	6 <sup>i</sup>	2.9m <sup>b</sup>	80.0±.3 <sup>b</sup>	-	40±23
Fr	206 <sup>r</sup>	-	16s <sup>b</sup>	-	.7s <sup>s</sup>	531 <sup>s</sup>	-	270±150

a Ekström ; comm. privée

a' ref.a : R < .1

b [Led 78]

c [Eks 78b]

d [Ben 58]

e [Eks 79]

f [Schu80]

g [Key 81]

h [Mar 80]

i [Thi 81a]

j [Gen 77]

k [Fis 78]

l [Eks 78]

m [Eks 77]

n [Gen 81]

p [Mar 81]

q [Lia 81]

r existence de l'isomère mise en doute (voir texte)

s [Rit 81]

t A.H.Wapstra - estimation

u G.Audi - estimation (voir texte)

**TABLEAU 20** : Ecart de nos mesures par rapport aux tables sans et avec corrections isomériques. Les tables considérées ici [Wap 81] résultent d'une évaluation très récente d'où toutes nos données expérimentales ont été volontairement retirées. Les valeurs de masses sont en keV

A		Masse Mesurée - Masse Tabulée	Déviati <sup>o</sup> n *	Masse Mesurée Corrigée - Masse Tabulée	Déviati <sup>o</sup> n *
Rb	81 <sup>s</sup>	-26±42	-0.62	-70±50	-1.39
	81 <sup>f</sup>	130±80	1.72	90±80	1.12
	82 <sup>s</sup>	90±35	2.56	50±45	1.15
	82 <sup>f</sup>	180±60	3.18	140±60	2.22
	84	480±40	11.38	250±70	3.44
	90	105±25	4.20	34±28	1.23
Cs	124	120±410	0.29	-110±430	-0.26
	130	75±32	2.34	-	-
	134	300±230	1.29	230±230	0.98

\* déviati<sup>o</sup>n =  $\frac{\text{écart}}{\text{incerti<sup>t</sup>ude}}$

s spallation

f fission



faut supposer soit que son rapport  $R$  est incorrect, et l'isomère serait alors prépondérant, soit qu'il existe une autre contamination. En tout état de cause, la valeur ainsi obtenue pour  $^{84}\text{Rb}$ , vient d'une seule séquence qui ne sert qu'à le déterminer : cette valeur n'a donc aucune influence sur les autres résultats.

En ce qui concerne le francium, l'étude très récente de Ritchie et al. [Rit 81] semble indiquer l'existence d'un isomère pour  $^{206}\text{Fr}$  (dans la réaction  $^{20}\text{Ne} + \text{Ir}$ ) à partir de l'observation d'une raie  $\alpha$  qui ne pourrait être attribuée qu'à lui. Ce résultat n'est pas certain, et comme ils le soulignent eux-mêmes, les coïncidences  $\alpha$ - $\gamma$  qui auraient pu confirmer l'existence de cet isomère n'avaient pas une signification statistique suffisante. Dans l'attente d'expériences ultérieures qui confirmeraient ou infirmeraient cette hypothèse, nous ne prendrons pas en compte ici la correction isomérique pour cet isotope.

#### *E inconnu*

Pour les isomères, enfin, dont l'énergie d'excitation n'est pas connue, aucune correction ne peut, en toute rigueur, être apportée. Il en résulte que la masse évaluée n'est qu'une limite supérieure de la masse de l'état fondamental.

Il s'agit, pour ce qui nous concerne (voir tableau 19), des isotopes  $^{118}, ^{119}, ^{120}, ^{121}, ^{122}$  et  $^{130}\text{Cs}$ .

En principe, des mesures de spectroscopie nucléaire sur ces Cs légers sont réalisables à ISOLDE à l'aide de faisceaux de baryum fluoré  $\text{BaF}^+$ . Nous souhaiterions vivement que de telles expériences puissent avoir lieu : elles permettraient une bonne détermination des énergies d'excitation  $E$  pour ces isotopes d'où nous pourrions déduire des corrections isomériques.

En l'absence de mesures expérimentales de  $E$ , des estimations en ont été faites à partir de systématiques d'états excités [Wap 81] (voir tableau 19). Pour  $^{121}\text{Cs}$  nous nous sommes basés sur une estimation par [Gar 78] de l'énergie du niveau  $9/2^+$  (40 keV environ) et sur l'observation toute récente [Gen 81] d'une raie ( $\Delta l = 3$ ) de 68,5 keV qui est due très probablement à la

transition isomérique entre les niveaux  $9/2^+$  et  $3/2^+$  de  $^{121}\text{Cs}$ . Ce dernier résultat n'est pas encore une certitude. En attendant confirmation nous décidons d'adopter pour E une valeur que nous estimons être  $100 \pm 60$  keV.

Pour  $^{118}, ^{120}$  et  $^{122}\text{Cs}$ , le rapport R étant très faible, la correction isomérique l'est aussi et l'estimation de E a une influence atténuée sur le résultat. Pour  $^{119}$  et  $^{121}\text{Cs}$ , ce n'est pas le cas et les résultats concernant ces deux isotopes, ainsi que  $^{130}\text{Cs}$  seront marqués d'un astérisque sur le tableau 22.

## 2) Isobares

Les contaminations par les isobares correspondent à des différences d'énergie beaucoup plus importantes et qui croissent notablement jusqu'à atteindre plusieurs MeV, lorsqu'on s'éloigne de la stabilité. Dans certains cas, ces contaminations-ci pourraient être considérées comme bénéfiques.

Un très bel exemple de contamination par les isobares est apparu lors de la mesure de masse des noyaux  $^{146}\text{Cs}$  et  $^{147}\text{Cs}$  dans les séries n° 17, 18, 19, 25 et 28 du tissu des Cs lourds. Dans la série n° 17 (139-144-146) tous les pics de  $^{146}\text{Cs}$  sont élargis de 3 fois leurs barres d'erreur et des traînes sont visibles vers l'intérieur (masses plus liées). L'étude de  $^{147}\text{Cs}$  à la série suivante (140-145-147) fait apparaître nettement, à la même température de l'ioniseur, une structure à deux pics (figure 25a) (ici, à la résolution  $R \approx 6000$  correspond une largeur à mi-hauteur de  $147000/6000 = 24,5$  MeV). Les pics intérieurs se révèlent être très sensibles à la température et un refroidissement important de l'ioniseur les fait disparaître sans trop atténuer les autres (figure 25b). Nous sommes visiblement en présence d'un isotope d'une terre-rare (moins ionisable), et la mesure de sa masse donne un excès de masse :

$$m(\text{T.R. } 147) = -79120 \pm 600 \text{ keV}$$

ce qui pourrait correspondre au prométhium ( $Z = 61$ ) ou au samarium ( $Z = 62$ ). C'est donc à basse température que la masse du  $^{146}\text{Cs}$  a pu être mesurée (séries 19 et 28), la terre-rare correspondante étant supposée subir la même inhibition que celle de  $A = 147$ .

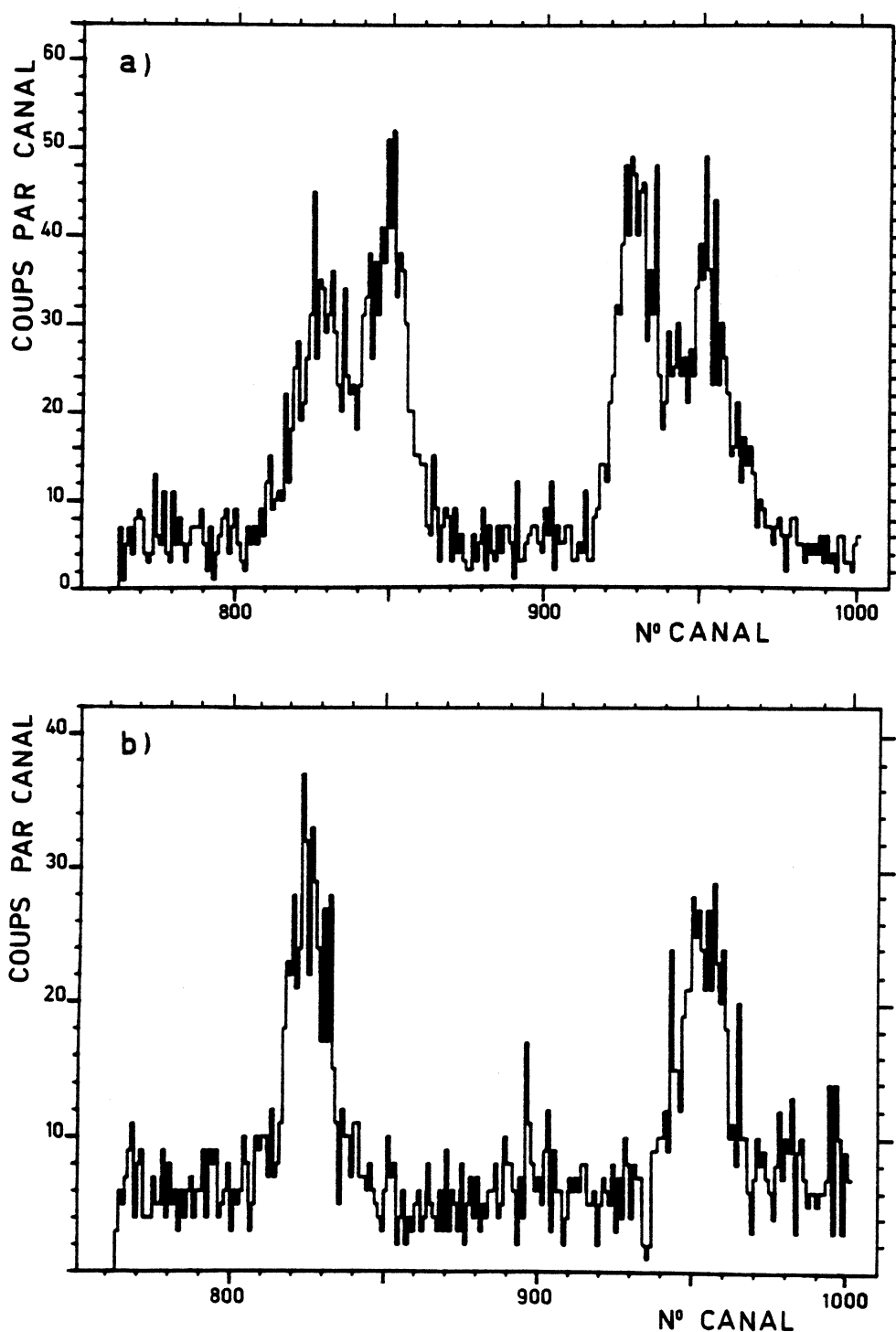


Figure 25 - Contamination isobarique à la masse 147. En haut, la température plus élevée de l'ioniseur en tantale permet l'ionisation de l'isobare ( $^{147}\text{Pm}$  ou  $^{147}\text{Sm}$ ) auquel correspond la paire de pics intérieure. En bas, à température moins élevée, il ne reste que  $^{147}\text{Cs}$ .

En conclusion, nous venons de voir qu'une résolution modeste autorise dans des cas très favorables (ici à  $A = 147$ ) des mesures par "doublets étroits", à condition de bien identifier l'isobare. L'utilisation, dans ce cas précis, d'un ioniseur en rhénium (qui favorise les terres-rares) aurait permis une bien meilleure détermination de la masse d'un noyau très exotique qu'est le  $^{147}\text{Cs}$ , ce qui ne serait pas sans intérêt pour la discussion que nous aurons plus loin sur la déformation des isotopes de Cs riches en neutrons (cf. § E-1-2a ; p. 151). En tout état de cause, une résolution beaucoup plus élevée faciliterait l'accès à un plus grand nombre de cas semblables.

### 3) Autres Contaminations

Nous récapitulons ici les autres contaminations observées et dont l'origine ne semble pas claire. Il s'agit de  $^{85}\text{Rb}$  et  $^{87}\text{Rb}$  produits par spallation "Rb légers" et dont il a été fait état au paragraphe C-IV-2 (p. 77). Il y a également l'isotope  $^{94}\text{Rb}$  pour lequel une contamination serait apparue (ou aurait disparu) en cours d'expérience dans les Rb lourds (cf. § C-IV-3c ; p. 86). Enfin le cas de  $^{224}\text{Fr}$  n'est pas très clair et nous le discuterons plus loin (C-VI et E-I-3b ; p. 112 et 165).

### 4) Synchromètre à Radio-Fréquence

Nous disions au § 1 que séparer des isomères de 100 keV d'énergie du fondamental, à la masse  $A = 100$  exige une résolution de  $10^6$ . Ceci semble bien être à la portée du Synchromètre à Radio-Fréquence mis au point par L.G.SMITH [Smi 75]. Une adaptation de ce principe aux mesures en ligne est en cours d'étude, à l'heure actuelle, au laboratoire, et devrait permettre dans un avenir proche de résoudre, parmi d'autres problèmes, ceux dus aux isomères et à la plupart des autres contaminations.

## VI - RESULTATS

Les masses définitives adoptées sont présentées dans les tableaux 21, 22 et 23 pour chacun des éléments Rb, Cs et Fr. Elles sont obtenues à partir des résultats actualisés (tableau 18) en tenant compte des corrections isomériques (tableau 19).

Nous les comparons aux tables [Wap 77] en ce qui concerne les résultats expérimentaux antérieurs à 1977 et aux résultats obtenus après cette date par des mesures de  $Q_\beta$ . Les écarts sont inférieurs aux incertitudes expérimentales pour les "Cs légers" et les "Fr" (à l'exception de  $^{224}\text{Fr}$ , nous y reviendrons). Pour les "Rb légers", les mesures de D.M.Moltz et al. [Mol 81] qui utilisent un Germanium Intrinsèque à UNISOR, sont en bon accord avec les nôtres pour  $^{77}\text{Rb}$  ; par contre leur  $^{78}\text{Rb}$  est moins lié ( $220 \pm 70$  keV) et leur  $^{76}\text{Rb}$  beaucoup plus lié ( $-2530 \pm 250$  keV) par rapport à nos mesures. Pour les "Rb lourds" et les "Cs lourds", les écarts sont reportés sur le tableau 24 où nous pouvons observer que :

- i) les résultats antérieurs à 1977 sont très éloignés des nôtres, tant en ce qui concerne Rb que Cs ; parmi les récents, l'accord est en général meilleur.
- ii) ceux obtenus par le groupe de F.Münnich auprès du séparateur OSTIS à Grenoble avec un télescope  $\beta$  en plastique scintillant, par coïncidence  $\beta$ - $\gamma$  [Key 81] sont partout en très bon accord avec les nôtres.
- iii) ceux obtenus, toujours à OSTIS, mais par K.D.Wünsch et al., avec une méthode expérimentale quelque peu différente (mesure des énergies  $\beta$  par un Germanium Intrinsèque [Wün 78] et [Dec 80]), sont en bon accord jusque  $^{94}\text{Rb}$  et  $^{142}\text{Cs}$  ; au-delà les masses qu'ils déterminent sont trop liées. Ceci traduit un trop faible  $Q_\beta$  mesuré, dû probablement à des transitions  $\gamma$  négligées dans le noyau-fils. En effet, les schémas de niveau des isotopes les plus exotiques sont denses et leur méconnaissance [Har 77] peut entraîner une sous-estimation de l'énergie totale  $\beta$  dans la chaîne  $\beta$ - $\gamma$ . De plus, dans leurs études, ils ont surtout réalisé des mesures de  $\beta$  simples, et la faible efficacité de leur détecteur pour des  $\beta$  d'énergie supérieure à 6 MeV a pu leur faire perdre les branches  $\beta$  de faible intensité et haute énergie.

**TABEAU 21** : Masses des isotopes de Rb (excès de masses, en keV) comparées aux valeurs des tables [Wap 77] et aux résultats des mesures par  $Q_\beta$  parus depuis 1977

<b>Rb</b>	Ce Travail $m_{\text{adopté}}$	Tables [Wap 77]	OSTIS Ge Intr. [Dec 80]	OSTIS Plast.Scint. [Key 81]	TRISTAN Plast.Scint. [Woh 78]	TRISTAN Ge Intr. [Bre 81]	UNISOR Ge Intr. [Mol 81]
74	-51980±370	-					
75	-57490±190	[-57510±600]					
76	-60760±150	[-60610±270]					-63290±200
77	-65100±105	[-65110±120]					-65135± 40
78	-67130± 70	[-67090±180]					-66908± 22
79	-70920± 45	-70860±110					-
80	-72190± 22	-72191± 22°					-
81	(-75490± 60) →	-75445± 35					TRIGA Plast.Scint. [Peu 80]
82	(-76140± 45) →	-76213± 20					
83	-79003± 28	-78985± 32°					
84	(-79500± 70) →	-79752± 4					
85	-82163± 3	-82163± 3°					
86	-	-82738± 3					
87	-84599± 3	-84599± 3°					
88	-82598± 5	-82597± 5°	-82593± 3	-	-82600± 60	-82601± 6	
89	-81706± 9	-81706± 9°	-81693± 9	-	-	-	
90	-79328± 23	-79570± 60	-79357± 15	-79380±150	-79390± 60	-	
91	-77788± 27	-77970± 40	-77788± 9	-	-77906± 40	-	
92	-74842± 31	-75120±200	-74781± 37	-74910±110	-74810±160	-	
93	-72750± 45	-72920±170	-72795±150	-72680±120	-72720±190	-	
94	-68610±140□	-	-68528± 31	-68600±160□	-	-68480±100	
95	-65880± 70	-66550±310	-66180±135	-65880±110	-	-	
96	-61210± 80	-	-61610±260	-61150±110	-	-61360±110	-62290±230
97	-58360±100	-	-	-58390±150	-	-	-
98	-54250±130	-	-	-54160±130	-	-54180±180	-55380±150
99	-50820±180	-	-	-	-	-	-

• masses de référence actualisées

[ ] ces valeurs sont nos résultats préliminaires, communiqués à A.H.WAPSTRA, avec des incertitudes surévaluées ; pour A = 77, moyenne entre la valeur de la table de 1975 (-65240±150) et notre résultat préliminaire (-64920±120)

( ) valeurs non adoptées → prendre en considération [Wap 77]

□ valeur moyenne (voir texte)

**Tableau 22** : Masses des isotopes de Cs (excès de masses, en keV) comparées aux valeurs des tables [Wap 77] et aux résultats des mesures par  $Q_\beta$  parus depuis 1977

<b>Cs</b>	Ce Travail $m_{\text{adopté}}$	Tables [Wap 77]	OSTIS Ge Intr. [Wün 78]	OSTIS Plast.Scint. [Key 81]	TRISTAN Plast.Scint. [Woh 78]
117	-65470±240	-			
118	-67640±200	-			
119	-71700±160*	-			
120	-73360±130	-73640±320			
121	-76760±120*	-			
122	-77750± 80	-			
123	-80810± 70	-			
124	-81750±140	-81530±480			
125	-84030± 40	-84035± 45°			
126	-84267± 26	-84330±140			
127	-86211± 10	-86207± 10°			
128	-85932± 6	-85935± 6°			
129	-87544± 13	-87524± 15°			
130	(-86786± 31)* →	-86863± 12			
131	-88068± 8	-88070± 8°			
132	-87177± 20	-87175± 23°			
133	-	-88089± 8			
134	(-86680±230) →	-86909± 8			
135	-	-87665± 9			
136	-	-86358± 8			
137	-86559± 7	-86559± 7°			
138	-82940± 35	-	-82940± 40	-	-82920± 80
139	-80711± 8	-80711± 8°	-80720± 10	-	-80640± 70
140	-77080± 23	-77240±250	-77110± 40	-	-77190±100
141	-74505± 26	-75000±100	-74590± 60	-	-74800±110
142	-70580± 40	-70950±130	-70540±110	-70540±120	-70590±120
143	-67800± 60	-	-68050±100	-67830±120	-
144	-63430± 80	-	-63720±200	-63360±140	-
145	-60240± 90	-	-	-60070±170	-
146	-55830±140	-	-	-55730±210	-
147	-52670±250	-	-	-	-

• masses de référence actualisées

\* correction isomérique inexistante pour  $^{130}\text{Cs}$  ; non satisfaisante pour  $^{119}$  et  $^{121}\text{Cs}$  (voir texte)

( ) valeur non adoptée → prendre en considération [Wap 77]

Tableau 23 : Masses des isotopes de Fr (excès de masses, en keV) comparées aux valeurs des tables [Wap 77] et aux résultats parus depuis 1977

<i>Fr</i>	Ce Travail $m_{\text{adopté}}$	Tables [Wap 77]	Autres Résultats
202	-	3160±310	3260±310 [Ewa 80]
203	-	1230±210	
204	930±500	-	
205	-1310±120	-	
206	-1380± 90*	-	
207	-3000± 80	-	
208	-2730± 50	-	
209	-3860± 45	-	
210	-3410± 40	-	
211	-4215± 35	-4233± 50°	
212	-3610± 30	-	21640±50 [Vas 79]
213	-3573± 10	-3572± 10°	
214	-	- 965± 13	
215	-	309± 13	
216	-	2975± 14	
217	-	4307± 15	
218	-	7050± 6	
219	-	8617± 9	
220	11459± 7	11459± 7°	
221	13266± 11	13265± 11°	
222	16350± 40	16380± 50°	21640±50 [Vas 79]
223	18381± 4	18381± 4°	
224	(21210± 50)	→ -	
225	23840± 70	-	
226	27170±110	27460±330	
227	29680±150	29580±100	
228	32430±650	-	

. masses de référence actualisées

\* existence d'un isomère non prise en compte (voir texte)

( ) valeur mise en doute - voir texte → prendre en considération [Vas 79]



**Tableau 24** : Ecart entre nos résultats et les autres résultats expérimentaux (en keV) pour les Rb lourds et les Cs lourds

<i>Rb</i>	Tables	OSTIS	OSTIS	TRISTAN	TRISTAN	TRIGA
	[Wap 77]	Ge Intr. [Dec 80]	Plast.Scint. [Key 81]	Plast.Scint. [Woh 78]	Ge Intr. [Bre 81]	Plast.Scint. [Peu 80]
88	réf.	5± 6	-	0± 60	- 3± 8	
89	réf.	13± 13	-	-	-	
90	-240± 60	- 29± 27	-50±150	- 60± 60	-	
91	-180± 50	0± 28		-120± 50	-	
92	-280±200	60± 50	-70±120	30±160	-	
93	-170±180	- 50±160	70±130	30±200	-	
94	-	80±140	10±210	-	130±170	
95	-670±320	-300±150	0±130	-	-	
96	-	-400±270	60±140	-	-150±140	-1080±240
97	-	-	-30±180	-	-	-
98	-	-	90±180	-	70±220	-1130±200
99	-	-	-	-	-	-

<i>Cs</i>	Tables	OSTIS	OSTIS	TRISTAN
	[Wap 77]	Ge Intr. [Wün 78]	Plast.Scint. [Key 81]	Plast.Scint. [Woh 78]
138	-	0± 50	-	20± 90
139	réf.	- 9± 13	-	70± 70
140	-160±250	- 30± 50	-	-110±100
141	-500±100	- 90± 70	-	-300±110
142	-370±140	40±120	40±130	- 10±130
143	-	-250±120	- 30±130	-
144	-	-290±220	70±160	-
145	-	-	170±190	-
146	-	-	100±250	-
147	-	-	-	-

Par contre pour les isotopes moins exotiques (jusque  $^{92}\text{Rb}$  et  $^{141}\text{Cs}$ ) pour lesquels les schémas de désintégration sont bien mieux connus, et les  $Q_\beta$  faibles, la qualité de leur détecteur leur permet des déterminations de masse de très bonne précision ( $< 40\text{--}50\text{ keV}$ ).

- iv) les résultats obtenus auprès du séparateur TRISTAN à Aimes (Iowa, USA) par l'équipe de F.K.Wohn [Woh 78] sont compatibles avec les nôtres à deux exceptions près :  $^{91}\text{Rb}$  et  $^{141}\text{Cs}$ . Il s'agit de mesures réalisées en 1971-1972 pour lesquelles les résultats ont été réévalués à la suite d'une recalibration de leurs détecteurs  $\beta$  (plastique scintillant).
- v) ceux obtenus, pour deux isotopes de Rb seulement ( $^{96}$  et  $^{98}\text{Rb}$ ) auprès du réacteur TRIGA à Mayence [Peu 79a] et [Peu 80] sont surprenants : les  $Q_\beta$  pour ces deux isotopes sont sous-estimés de plus de 1 MeV. La méthode expérimentale est pourtant classique, avec un télescope  $\beta$  en plastique scintillant et l'étude des coïncidences  $\beta$ - $\gamma$ .  
La comparaison des "droites" de Kurie publiées dans [Peu 79a] et [Key 81] pour les coïncidences  $\beta$  avec la raie  $\gamma$  de 815 keV du noyau-fils  $^{96}\text{Sr}$ , semble indiquer que la faible statistique n'ait pas permis au groupe de TRIGA de voir la "queue" du spectre  $\beta$  dans la désintégration de  $^{96}\text{Rb}$ .
- vi) enfin, les résultats de Rb, tout récents [Bre 81], obtenus auprès du séparateur TRISTAN après sa réinstallation (fin 1980) en ligne avec le réacteur à haut flux de Brookhaven, sont en bon accord avec les nôtres. La méthode expérimentale permet l'étude des coïncidences  $\beta$ - $\gamma$ , les  $\beta$  étant détectés par un Ge Intrinsèque.

Problème de  $^{94,96}\text{Rb}$

Pour  $^{94}\text{Rb}$ , nos résultats expérimentaux donnent deux valeurs. Etant donné que les arguments que nous avons développés dans [Eph 79] n'ont pas été confirmés par les observations faites à ISOLDE (cf. § C-IV-3c), nous ne saurions indiquer lequel de ces résultats est non contaminé. Nous avons

donc deux valeurs également probables, déterminant une distribution de probabilité à deux fonctions  $\delta$ . La valeur moyenne d'une telle distribution est égale à la demi-somme, et l'écart-type à la demi-différence, qui sera ajoutée quadratiquement à l'incertitude sur la mesure de  $^{94}\text{Rb}$ .

A la suite de la publication [Eph 79], le groupe de F. Münnich (OSTIS ; plastique scintillant) [Key 81] ayant trouvé deux ensembles de résultats de  $Q_\beta$  disjoints pour  $^{94}\text{Rb}$ , les a attribués à la présence possible d'un isomère. Ces deux observations ne peuvent être considérées comme des preuves de l'existence d'un isomère, celles-ci devant être apportées par d'autres méthodes expérimentales (mesures des temps de vie, des spins...).

Dans l'état actuel des recherches, nous sommes amenés à rejeter ces hypothèses sur l'existence d'isomère pour  $^{94}\text{Rb}$  ainsi que pour  $^{96}\text{Rb}$  (pour lequel des arguments semblables ont été développés : [Peu 79a] et [Key 81]). Nous appliquons donc au résultat de [Key 81] pour  $^{94}\text{Rb}$  le même traitement que nous venons d'appliquer au nôtre et nous signalons ce cas, au tableau 21, par un symbole carré.

#### Problème de $^{224}\text{Fr}$

Nous pouvons noter pour  $^{224}\text{Fr}$  le désaccord important entre notre résultat et ceux dus aux mesures de  $Q_\beta$ . Dès 1975, Westgaard et al. [Wes 75] avaient pu déterminer une limite inférieure pour  $Q_\beta$ , d'où découle une limite de l'excès de masse de  $^{224}\text{Fr}$  :

$$ME(^{224}\text{Fr}) \geq 21433 \pm 50 \text{ keV}$$

qui est déjà située à 200 keV au-dessus de notre valeur. Une étude plus récente du schéma de la désintégration  $\beta$  [Vas 79] conduit à une valeur de  $21643 \pm 50 \text{ keV}$ , moins liée que la nôtre de 440 keV.

D'autre part, nous verrons plus loin (cf. E-I-3b ; p.165 ) que notre résultat pour  $^{224}\text{Fr}$  s'insère mal dans le comportement des noyaux voisins. Ce comportement suggère pour  $^{224}\text{Fr}$  une masse moins liée d'environ 300 keV.

Aucune explication n'a pu être trouvée pour cette anomalie : cet isotope apparaît dans 8 séquences pour lesquelles les résultats ont tous

d'excellents facteurs de cohérence, Coh (tableau 16) ; mais ces 8 séquences sont étudiées uniquement dans la seconde expérience sur les isotopes de Fr (voir tableau 11). De nouvelles mesures de la masse de cet isotope seront réalisées prochainement, en faisant varier la température de l'ioniseur afin de faire ressortir d'éventuelles contaminations.

En tout état de cause, les conditions expérimentales n'ayant pas varié pendant toute la durée de l'expérience, la contamination, si elle existe, est restée constante et nous pouvons affirmer que les masses mesurées pour les autres isotopes ne sont pas perturbées par ce résultat du  $^{224}\text{Fr}$ .

D'autre part, aucun isomère n'est connu dans cette région des "Fr lourds", de sorte que les masses mesurées n'ont vraisemblablement pas subi de contaminations isomériques.

#### *Dérives d'ensemble des Mesures en Chaînes*

Pour être complets, nous nous devons de signaler les risques que peut présenter toute expérience comportant des chaînes de mesures corrélées : des dérives d'ensemble peuvent apparaître dans de telles expériences sans donner lieu à une perte de cohérence significative [Wap 80]. Ce risque existe donc pour nos mesures, mais également pour les chaînes de désintégration  $\beta$  reliant des isotopes exotiques à la vallée de stabilité, et pour toute autre chaîne.

Cela dit, aucune dérive due à la méthode expérimentale n'a été détectée jusqu'ici. Il serait tout de même souhaitable, pour éliminer totalement ce risque, de déterminer la masse d'un isotope très exotique pour chaque chaîne (Rb légers, Rb lourds, Cs légers, Cs lourds, Fr légers et Fr lourds) par une autre méthode expérimentale (ce qui est déjà réalisé pour les Rb lourds et Cs lourds, comme nous venons de le voir, grâce aux  $Q_\beta$ ) ; ou, mieux encore, par "doublet étroit" (cf. C-V-2 : "Isobares").

## VII - MASSES "SECONDAIRES"

Il arrive assez souvent qu'une relation de masse ait été établie [Wap 77] entre deux noyaux de masse inconnue ( $Q_\alpha$ ,  $Q_\beta$  ou  $Q_{\text{réaction}}$ ).

Lorsque, par nos expériences, une de ces masses est mesurée, l'autre peut en être déduite grâce à cette relation : elle est dite "masse secondaire".

C'est ainsi que peuvent être déterminées les masses, considérées inconnues dans les tables de 1977 [Wap 77], des isotopes

$^{114}\text{Te}$	$^{196} \text{ à } ^{202}, ^{204}\text{Bi}$
$^{115}, ^{118}, ^{122}, ^{138}\text{Xe}$	$^{200} \text{ à } ^{206}, ^{208}\text{At}$
$^{143}, ^{144}, ^{145}\text{Ba}$	$^{209} \text{ à } ^{214}, ^{216}\text{Ac}$ et
$^{197}\text{Tl}$	$^{215} \text{ à } ^{218}\text{Pa},$

soit au total 36 masses secondaires.

Le tableau 25 présente l'ensemble des masses secondaires déduites des masses des isotopes de Cs.

**TABEAU 25** : Masses des isotopes de tellure, xénon et baryum déduites des masses mesurées des isotopes du césium

Relation	par	Quantité Mesurée (keV)	Référence	Masse Secondaire (keV)
$^{118}\text{Cs} \rightarrow ^{114}\text{Te}$	$\alpha$ retardés	$Q_{\text{EC}} - B_\alpha = 11100 \pm 500$	[Wap77], [D'Au78]	$^{114}\text{Te} : -81170 \pm 540$
$^{115}\text{Xe} \rightarrow ^{114}\text{Te}$	p retardés	$Q_{\text{EC}} - B_p = 6200 \pm 130$	[Hor 72]	$^{115}\text{Xe} : -67675 \pm 560$
$^{118}\text{Cs} \rightarrow ^{118}\text{Xe}$	$\beta^+$	$Q_{\text{EC}} = 9300 \pm 1000$	[D'Au 76]	$^{118}\text{Xe} = -76940 \pm 1020$
$^{122}\text{Cs} \rightarrow ^{122}\text{Xe}$	$\beta^+$	$Q_{\text{EC}} = 7050 \pm 400$	[D'Au 76]	$^{122}\text{Xe} : -84790 \pm 410$
$^{138}\text{Xe} \rightarrow ^{138}\text{Cs}$	$\beta^-$	$Q_\beta = 2830 \pm 80$	[Woh 78]	$^{138}\text{Xe} : -80115 \pm 85$
$^{143}\text{Cs} \rightarrow ^{143}\text{Ba}$	$\beta^-$	$Q_\beta = 6010 \pm 40$	[Wün 78]	$^{143}\text{Ba} : -73845 \pm 70$
$^{144}\text{Cs} \rightarrow ^{144}\text{Ba}$	$\beta^-$	$Q_\beta = 8220 \pm 140$	[Wün 78]	$^{144}\text{Ba} : -71690 \pm 160$
$^{145}\text{Cs} \rightarrow ^{145}\text{Ba}$	$\beta^-$	$Q_\beta = 6100 \pm 500$	[Wün 74]	$^{145}\text{Ba} : -66380 \pm 510$

**TABEAU 26 : Masses des isotopes d'actinium, protactinium, astate, bismuth et thallium, déduites des masses mesurées des isotopes de francium et des énergies de décroissance  $\alpha$  connues antérieurement**

Relation par Décroissance $\alpha$	$Q_{\alpha}$ (keV)	Isotope	Excès de Masse (keV)
$^{209}_{Ac} \rightarrow ^{205}_{Fr}$	$7730 \pm 50$ <sup>a</sup>	$^{209}_{Ac}$	$8850 \pm 130$
$^{210}_{Ac} \rightarrow ^{206}_{Fr}$	$7610 \pm 50$	$^{210}_{Ac}$	$8650 \pm 100$
$^{211}_{Ac} \rightarrow ^{207}_{Fr}$	$7620 \pm 50$	$^{211}_{Ac}$	$7050 \pm 90$
$^{212}_{Ac} \rightarrow ^{208}_{Fr}$	$7520 \pm 50$	$^{212}_{Ac}$	$7220 \pm 70$
$^{213}_{Ac} \rightarrow ^{209}_{Fr}$	$7503 \pm 8$ <sup>b</sup>	$^{213}_{Ac}$	$6070 \pm 45$
$^{214}_{Ac} \rightarrow ^{210}_{Fr}$	$7350 \pm 50$	$^{214}_{Ac}$	$6370 \pm 60$
$^{216}_{Ac} \rightarrow ^{212}_{Fr}$	$9241 \pm 8$ <sup>b</sup>	$^{216}_{Ac}$	$8054 \pm 32$
$^{215}_{Pa} \rightarrow ^{211}_{Ac}$	$8240 \pm 50$	$^{215}_{Pa}$	$17710 \pm 110$
$^{216}_{Pa} \rightarrow ^{212}_{Ac}$	$8010 \pm 50$	$^{216}_{Pa}$	$17650 \pm 90$
$^{217}_{Pa} \rightarrow ^{213}_{Ac}$	$8490 \pm 50$	$^{217}_{Pa}$	$16980 \pm 70$
$^{218}_{Pa} \rightarrow ^{214}_{Ac}$	$9795 \pm 20$ <sup>b</sup>	$^{218}_{Pa}$	$18590 \pm 70$
$^{204}_{Fr} \rightarrow ^{200}_{At}$	$7168 \pm 5$ <sup>b</sup>	$^{200}_{At}$	$-8660 \pm 500$
$^{205}_{Fr} \rightarrow ^{201}_{At}$	$7050 \pm 50$ <sup>a</sup>	$^{201}_{At}$	$-10790 \pm 130$
$^{206}_{Fr} \rightarrow ^{202}_{At}$	$6920 \pm 50$	$^{202}_{At}$	$-10730 \pm 100$
$^{207}_{Fr} \rightarrow ^{203}_{At}$	$6900 \pm 50$	$^{203}_{At}$	$-12330 \pm 90$
$^{208}_{Fr} \rightarrow ^{204}_{At}$	$6770 \pm 50$	$^{204}_{At}$	$-11930 \pm 70$
$^{209}_{Fr} \rightarrow ^{205}_{At}$	$6780 \pm 5$ <sup>b</sup>	$^{205}_{At}$	$-13070 \pm 45$
$^{210}_{Fr} \rightarrow ^{206}_{At}$	$6670 \pm 50$	$^{206}_{At}$	$-12510 \pm 60$
$^{212}_{Fr} \rightarrow ^{208}_{At}$	$6530 \pm 3$ <sup>b</sup>	$^{208}_{At}$	$-12565 \pm 30$
$^{200}_{At} \rightarrow ^{196}_{Bi}$	$6670 \pm 50$	$^{196}_{Bi}$	$-17760 \pm 500$
$^{201}_{At} \rightarrow ^{197}_{Bi}$	$6470 \pm 50$	$^{197}_{Bi}$	$-19680 \pm 140$
$^{202}_{At} \rightarrow ^{198}_{Bi}$	$6350 \pm 2$ <sup>b</sup>	$^{198}_{Bi}$	$-19500 \pm 110$
$^{203}_{At} \rightarrow ^{199}_{Bi}$	$6210 \pm 50$	$^{199}_{Bi}$	$-20960 \pm 110$
$^{204}_{At} \rightarrow ^{200}_{Bi}$	$6070 \pm 50$	$^{200}_{Bi}$	$-20420 \pm 90$
$^{205}_{At} \rightarrow ^{201}_{Bi}$	$6021 \pm 2$ <sup>b</sup>	$^{201}_{Bi}$	$-21510 \pm 45$
$^{206}_{At} \rightarrow ^{202}_{Bi}$	$5884 \pm 2$	$^{202}_{Bi}$	$-20810 \pm 60$
$^{208}_{At} \rightarrow ^{204}_{Bi}$	$5751 \pm 3$ <sup>b</sup>	$^{204}_{Bi}$	$-20740 \pm 30$
$^{201}_{Bi} \rightarrow ^{197}_{Tl}$	$4500 \pm 6$	$^{197}_{Tl}$	$-28440 \pm 45$

a une incertitude de 50 keV est attribuée lorsque l'état final du noyau-fils dans la désintégration  $\alpha$  n'est pas connu

b la décroissance  $\alpha$  peuple le niveau fondamental

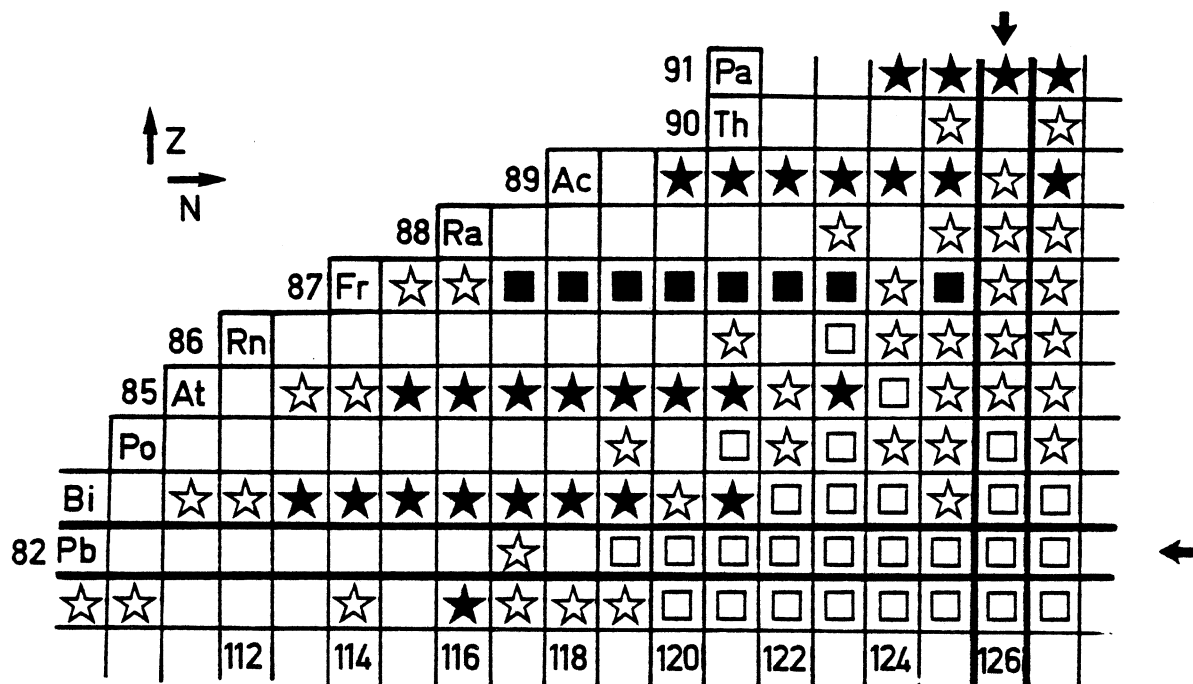


Figure 26 - Masses dans la région ( $N < 126$  ;  $Z > 82$ ) :

Symboles clairs : masses connues antérieurement

carrés masses déterminées par au moins deux mesures différentes (masses dites "primaires" dans [Wap 77])

étoiles masses déterminées par une seule mesure (masses "secondaires" de [Wap 77])

Symboles pleins : masses déterminées par nos mesures

carrés masses des isotopes de francium mesurées par spectrométrie de masse en ligne

étoiles masses déduites des précédentes et des  $Q_\alpha$  connus antérieurement.

Au voisinage du francium, du côté déficient en neutrons, toute la région ( $N \leq 126$  ;  $Z \geq 82$ ) se trouvait être assez peu connue au point de vue des masses atomiques. La percée des isotopes de Fr (figure 26), liée à la connaissance antérieure [Led 78], [Sch<sub>a</sub>79] des énergies de désintégration  $\alpha$ , permet de recouvrir, relativement bien, cette région. Le tableau 26 présente l'ensemble des résultats ainsi obtenus dans cette région. Dans le cas où le schéma de désintégration n'est pas connu avec certitude, nous adoptons la démarche de [Wap 77] et assignons, aux masses ainsi déterminées, une incertitude de 50 keV.

o o  
o





## C H A P I T R E D

### "POUVOIR DE PREDICTION" DES MODELES NUCLEAIRES

Après avoir passé en revue les principales méthodes de prédiction des masses atomiques, nous comparerons les masses expérimentales déterminées ici avec les valeurs estimées par ces méthodes.

Le pouvoir de prédiction des différentes formules de masses pourra être alors étudié le long de trois lignes isotopiques du plan  $(N, Z)$  qui correspondent aux éléments Rb, Cs et Fr, ainsi que dans la région  $(N \leq 126; Z \geq 82)$  grâce aux masses secondaires.

---

## I - REVUE DES PRINCIPALES METHODES DE PREDICTION DES MASSES

L'histoire de la mesure expérimentale des masses est étroitement liée à celle de leur prédiction à partir soit de modèles théoriques soit de formules plus ou moins empiriques, soit encore d'extrapolations à partir des masses connues.

En effet, les formules et relations de masses sont généralement produites avec deux objectifs principaux dont l'importance relative varie suivant le type de formule ou de relation et suivant les auteurs. L'un de ces objectifs est d'avoir un bon pouvoir de prédiction des masses inconnues. L'autre est de mettre en évidence des effets plus fins des propriétés physiques de la matière nucléaire grâce à l'étude systématique des écarts entre masses mesurées et masses calculées. De cette confrontation avec les mesures expérimentales, les modèles peuvent tirer des informations, qualitatives ou quantitatives, qui pourront alors engendrer des termes correctifs à la formule ou relation concernée. Cela a été le cas, par exemple, des corrections de couches, d'appariements ou de déformations dans les formules de goutte liquide, ou encore du terme dit "de Wigner" qui sera réexaminé, dans le cadre de ce travail, au chapitre suivant.

En retour, les modèles peuvent stimuler des mesures de masses plus précises ou des mesures sur de nouveaux isotopes.

Notons enfin qu'une discipline comme l'Astrophysique, a besoin pour les calculs de nucléosynthèses (processus-r en particulier) d'estimations de masses d'isotopes extrêmement exotiques, s'intéressant, par là-même, plus au pouvoir de prédiction d'une méthode donnée et à ses résultats qu'à son contenu. Nous nous attacherons, dans nos comparaisons, à souligner ce pouvoir de prédiction.

Nous distinguerons ici trois types de méthodes de calcul : les relations de masses (relations locales et "systématiques") ; les formules semi-empiriques basées soit sur des modèles collectifs (par exemple : goutte liquide), soit sur des modèles de particules indépendantes (modèle des couches); et les démarches plus fondamentales qui considèrent des particules individuelles dans un champ moyen nucléaire et aboutissent au modèle des couches ou aux méthodes Hartree-Fock.

## 1) Les Relations de Masses

### *a - Systématiques" de WAPSTRA*

L'étude systématique de grandeurs liées à la surface nucléaire ( $S_{2n}$ ,  $S_{2p}$ ,  $Q_\beta$ ,  $Q_\alpha$ , ...) montre que ces grandeurs varient généralement de façon régulière. Cela permet à A.H.Wapstra de prédire par interpolation (ou très courte extrapolation), des valeurs de masses inconnues. Ces estimations sont notées "SYST" dans les tables de masses [Wap 77].

### *b - Relations Locales de GARVEY et KELSON*

A partir de l'hypothèse, généralement acceptée dans le cadre du modèle des particules indépendantes, d'une variation lente des énergies des particules individuelles, et des interactions résiduelles, en fonction du nombre de nucléons, et sans aucune autre hypothèse sur le modèle nucléaire, Garvey et Kelson [Gar 66] ont construit des relations locales telles qu'il y ait compensation des interactions nucléaires p-p, p-n et n-n ainsi que des interactions coulombiennes.

De par leur construction, ces relations supposent la régularité des propriétés nucléaires. Elles transposent donc les structures connues vers les noyaux exotiques possédant le même nombre de protons ou le même nombre de neutrons et, au contraire, ne peuvent prédire de nouvelles structures. De ce fait, elles représentent un bon test d'apparition ou de disparition d'une propriété nucléaire pour des isotopes ou des isotones. Un exemple récent illustre ceci, celui de la découverte d'une nouvelle région de déformation pour les isotopes de sodium, à partir de  $N = 20$  [Thi 75]. Nous verrons, au chapitre suivant, cet effet à deux reprises.

Du point de vue de la prédiction de masses inconnues, ces relations locales donnent d'excellentes interpolations et extrapolations proches. Pour les extrapolations lointaines par contre, il faut s'attendre à des écarts importants dus, d'une part, à cette stricte conservation des propriétés nucléaires (que nous nommons "erreur intrinsèque") et, d'autre part, comme pour toute chaîne de mesures ou de calculs, à la propagation des incertitudes sur les masses connues. Cette dernière erreur, dite "expérimentale"

peut être évaluée par une méthode semblable à celle que nous avons appliquée à nos résultats.

Les développements récents effectués dans ce cadre et auxquels seront comparés nos résultats, sont ceux de Comay et Kelson [Com 76], de Jänecke [Jän 76] et de Jänecke et Eynon [Jän 76a]. Les deux premiers utilisent la relation de Garvey-Kelson dans sa forme classique. Le troisième démontre que cette relation peut être considérée comme étant une solution d'une équation différentielle partielle homogène et la généralise en une équation inhomogène.

Le nombre de paramètres pour l'ensemble de la table de masses est très important, 500 pour [Jän 76], l'ensemble des masses connues pour [Com 76] et 220 pour l'équation inhomogène de [Jän 76a]. Par contre l'accord avec les masses connues est évidemment très bon : 120 keV pour [Jän 76], 100 keV pour [Com 76] et 300 keV pour [Jän 76a] (écarts moyens, simples ou quadratiques, donnés dans ces tables).

Plus récemment, Monahan et Serduke [Mon 80] ont développé des familles de relations locales simples, sur cette même base. A notre connaissance ils n'ont pas encore publié de table : nous ne pourrions donc comparer nos résultats à leurs prédictions.

## 2) Les Formules de Masses Semi-Empiriques

### *a- Formules Basées sur des Modèles Collectifs*

#### Modèle de la Goutte Liquide

Un noyau de  $A$  nucléons est assimilé à une goutte liquide. Sa masse est donnée par une formule dont les termes représentent les énergies de volume, de surface, de symétrie et de Coulomb [Gam 30], [Bet 36].

Pour tenir compte des effets de couches, des énergies d'appariement [Cam 57] et des déformations [Mye 66], des termes correctifs ont dû être introduits, par la suite, de façon empirique. Ainsi donc, à la formulation macroscopique qui donne la description des propriétés "collectives" du

noyau, se substitue une formulation dite "macroscopique-microscopique". Le nombre de paramètres dépasse ainsi la vingtaine.

Depuis cette date, par souci d'augmenter le pouvoir de prédiction de ces formules de "goutte liquide", des termes supplémentaires qui se veulent réalistes ont été ajoutés. Il s'ensuit une augmentation inconsidérée du nombre de paramètres (plus de 50) de la formule qui n'a généralement pas pour contrepartie une nette amélioration de l'accord avec les masses connues et on peut constater que, depuis une quinzaine d'années, le pouvoir de prédiction des formules de masses s'appuyant sur la goutte liquide a peu progressé. L'écart quadratique moyen des masses ainsi prédites par rapport aux masses connues se situe vers 500 keV ou 1 MeV.

Les formules de ce type auxquelles seront comparés nos résultats sont celles de Myers et Swiatecki [Mye 66], de Myers [Mye 76] et [Mye 77], de Groote, Hilf et Takahashi [Gro 76] et [Tak 76], de Seeger et Howard [See 75] et [See 76] et de Uno et Yamada [Uno 81] et [Uno81a]. Les trois premières, pour introduire la correction de couches, utilisent la méthode dite du "bunching" (les niveaux d'énergie continûment répartis issus d'un modèle de gaz de Fermi sont regroupés par paquets en introduisant des nombres magiques) ; celle de Seeger et Howard suit, pour évaluer cette correction de couches, la prescription de Strutinsky [Str 75] appliquée au modèle de Nilsson (à la somme des énergies des niveaux de Nilsson [Nil<sub>69</sub>] occupés est retirée une quantité analogue obtenue en "étalant" ces mêmes niveaux par des gaussiennes) ; la dernière, enfin, considère des corrections de couches empiriques, déterminées par méthode statistique spécifique.

#### Modèle dit de "Yukawa"

Il s'agit, ici, d'une formulation particulière du modèle de la goutte liquide, dans laquelle le terme d'énergie de surface est remplacé par l'intégrale d'une fonction de Yukawa [Kra 74], et plus récemment par une fonction "Yukawa-plus-exponentielle" [Kra 79].

Nous comparerons nos résultats aux estimations obtenues récemment par Möller et Nix [Möl 80] à partir de cette dernière formulation. Dans celle-ci la correction de couches est toujours évaluée par la méthode de Strutinsky, mais appliquée à des niveaux issus d'un potentiel Yukawa.

### b - Formule Basée sur le Modèle des Couches

Liran et Zeldes [Lir 76] ont construit une formule basée sur le modèle des couches, en considérant, pour l'état fondamental, un mélange de configurations avec le plus grand nombre possible de paires de nucléons couplées à  $J = 0$  et de paires neutron-proton couplées à  $T = 0$ . Les déformations sont représentées par des interactions de configurations entre sous-couches voisines.

Les paramètres dans l'expression de l'énergie de liaison ainsi obtenue sont ajustés dans chacune des régions délimitées par les nombres magiques ( $N$  et  $Z = 2, 8, 20, 28, 50, 82$  et  $N = 126$ ), les nombres semi-magiques n'étant pas pris en considération ( $N = 14$  et  $56$  et  $Z = 14, 40$  et  $64$ ).

Le nombre de paramètres libres est très important (178), mais en contrepartie, l'accord avec les masses connues est assez bon (écart quadratique moyen : 276 keV).

### 3) Méthodes Fondamentales

Dans le modèle des particules indépendantes dans un champ moyen, intervient la description quantique du noyau. De ce fait, il est le seul à pouvoir reproduire, et éventuellement prédire, les aspects quantiques du noyau, en particulier la structure en couches, sans injection extérieure des nombres magiques.

De plus, étant donné que l'énergie des particules indépendantes est fortement fonction de la forme du potentiel moyen, il est le seul à pouvoir, effectivement, prévoir les déformations des noyaux.

Dans une première formulation, on peut définir le potentiel moyen dans lequel se meuvent les particules indépendantes (par exemple : oscillateur harmonique déformé + terme spin-orbite) et résoudre le système d'équations des particules individuelles pour obtenir le MODELE des COUCHES de Nilsson [Nil 55]. Ce modèle décrit assez bien les énergies d'excitation du noyau par rapport à l'état fondamental, mais assez mal l'énergie de ce dernier.

La résolution de l'équation aux valeurs propres  $H\psi = E\psi$  par la méthode variationnelle de Hartree-Fock [Kel 63],[Rip 68], permet de mieux appréhender ce dernier aspect.

Les différents développements obtenus dans ce cadre avec la technique de calcul dite "auto-cohérente" ("self-consistent" en anglais), se distinguent les uns des autres par le choix de la force d'interaction nucléon-nucléon qui engendre le potentiel moyen (force réaliste ou force "effective"\*). Ceux qui reproduisent le mieux les densités de niveaux, les rayons et les masses qui nous intéressent ici, utilisent des forces purement "effectives", dépendantes de la densité nucléaire et de portée nulle. Deux résultats obtenus sur cette base vont retenir notre attention : le calcul DDHF ("density-dependent Hartree-Fock") avec la force de SKYRME [Vau 73] et un autre, très voisin, qui paramétrise directement la densité d'énergie ("Formalisme de la Densité d'Energie") [Bei 76] et [Ton 80].

Ces calculs sur ordinateurs sont longs et complexes, aussi ne sont-ils pas effectués pour tous les noyaux, mais uniquement dans quelques régions particulières.

Seuls Beiner, Lombard et Mas [Bei 76] ont étendu leurs calculs (Densité d'Energie) à la quasi-totalité des noyaux pairs-pairs du plan (N,Z) compris entre les limites des stabilités proton et neutron, mais les ont considérés tous sphériques. Les masses des noyaux de A impair ont été déduites des précédentes par une correction tenant compte des énergies d'excitation et des potentiels chimiques calculés. Pour les isotopes de Na, K et Rb, exceptionnellement, ce type de calcul a été étendu aux noyaux impairs-impairs [Bei 75a].

F.Tondeur a étendu ce formalisme de la densité d'énergie aux noyaux déformés [Ton 80] et l'a appliqué en particulier à deux noyaux exotiques qui nous intéressent ici,  $^{98}\text{Rb}$  (N = 61) et  $^{147}\text{Cs}$  (N = 92) [Ton 79a].

Récemment, des calculs DDHF pour des noyaux déformés ont été effectués pour les isotopes pairs de Kr et Sr, voisins immédiats du rubidium [Cam 80].

---

\* Note : on devrait plutôt dire "force efficace" (qui produit l'effet qu'on en attend), mais l'usage a imposé cette traduction impropre de l'anglais "effective force".



**TABLEAU 27** : Paramètres optimisés de la base des oscillateurs dans les calculs Hartree-Fock des isotopes de xénon et de baryum

<i>Xe</i>		$\beta_o(\text{fm}^{-1})$	q	<i>Ba</i>		$\beta_o(\text{fm}^{-1})$	q
A	N			A	N		
112	58	.49	1.15	114	58	.55	1.175
114	60	.48	1.15	116	60	.55	1.175
116	62	.53	1.00	118	62	.54	1.15
118	64	.53	1.00	120	64	.54	1.17
120	66	.53	0.975	122	66	.54	1.17
122	68	.53	0.975	124	68	.54	1.15
124	70	.53	1.00	126	70	.54	1.15
126	72	.53	1.00	128	72	.535	1.00
128	74	.53	1.00	130	74	.535	1.00
130	76	.53	1.00	132	76	.53	1.00
132	78	.53	1.00	134	78	.53	1.00
134	80	.53	1.00	136	80	.53	1.00
136	82	.53	1.00	138	82	.53	1.00
138	84	.53	1.00	140	84	.525	1.00
140	86	.525	1.00	142	86	.515	1.00
142	88	.52	1.00	144	88	.52	1.00
144	90	.51	1.00	146	90	.52	1.15
146	92	.51	1.00	148	92	.515	1.17
148	94	.51	1.15	150	94	.51	1.175
150	96	.51	1.15	152	96	.51	1.15

Par contre, et à notre connaissance, aucun calcul n'a été réalisé jusqu'ici dans la région du césium. Nous avons donc, en collaboration avec X.Campi, appliqué cette méthode de Hartree-Fock aux noyaux pairs-pairs, voisins du Cs.

#### Calculs DDHF

Nous utilisons dans ce calcul la même force "effective" SKYRME VI que celle utilisée pour les isotopes de Kr et Sr.

L'hypothèse [Vau 72] de l'invariance, par renversement du temps, du sous-espace des états (de particules individuelles) occupés, ne permet que l'étude des noyaux pairs-pairs. C'est pourquoi nous avons calculé les solutions pour les isotopes pairs en neutrons des éléments, de Z pair, voisins de Cs ( $Z = 55$ ) : Xe ( $Z = 54$ ) et Ba ( $Z = 56$ ).

Dans ces calculs, les corrélations d'appariement sont prises en compte par l'introduction dans l'expression de l'énergie Hartree-Fock d'un terme d'appariement [Bei75] avec une force G d'intensité constante ( $G = g/A$  et  $g = 13.5$  MeV) et par des probabilités d'occupation des états à une particule qui sont les amplitudes BCS.

Le système des équations de Hartree-Fock est alors résolu sur une base déformée de 8 oscillateurs [Vau 73]. Les paramètres de cette base ( $\beta_0$  paramètre de volume et  $q$  paramètre de déformation) [Vau 73] sont ceux qui minimisent, pour chaque noyau, l'énergie de l'état fondamental ; ils sont donnés au tableau 27. Notons ici que la troncature de cette base à 8 oscillateurs conduit à une sous-estimation des énergies de liaison des noyaux de cette région de quelques MeV [Flo 73].

## II - COMPARAISON AVEC LES PREDICTIONS

Cette comparaison est réalisée à la fois visuellement sur les figures 27, 28, 29, 30 et 31 et quantitativement sur le tableau 28.

Nous ne prenons pas ici en compte les prédictions obtenues dans le cadre du modèle des particules indépendantes par la méthode Hartree-Fock, car elles conduisent systématiquement à un défaut d'énergie de liaison [Flo 73][Que 76] qui peut être dû à l'effet de troncature que nous venons de voir ou à un choix trop restrictif de symétries. L'étude des différences finies de la surface de masse nucléaire, au chapitre suivant, nous affranchira de ce handicap.

Sur les figures 27, 28 et 29 nous portons, pour chacun des éléments Rb, Cs et Fr, les différences entre les masses calculées et mesurées. Ces dernières étant prises comme référence, sont placées sur la droite d'ordonnée nulle.

Dans le tableau 28 nous reportons pour chacune des formules ou relations la moyenne simple des différences de masses (calculées et mesurées) diminuées des incertitudes expérimentales, séparément pour les masses qui étaient connues [Wap 77] et pour celles que nous avons mesurées dans ce travail. Cette méthode d'évaluation des écarts n'est pas sans défauts, mais elle nous semble préférable aux méthodes classiques. En effet, une moyenne quadratique [Mar 76] donne un poids considérable à la moins bonne valeur et perd ainsi l'information sur toutes les autres valeurs. D'autre part, si la moyenne (simple ou quadratique) des écarts est pondérée par les incertitudes expérimentales, ce sont les termes correspondant aux masses connues avec la plus grande précision qui seront prépondérants. Notre moyenne représente en quelque sorte l'aire, sur les figures 27, 28 et 29, comprise entre la courbe d'un calcul donné et l'extrémité des barres d'erreurs expérimentales.

Les comparaisons avec les calculs de Uno et Yamada [Uno 81] et [Uno 81a] ont dû être présentées séparément sur la figure 30, avec les mêmes conventions. Cette figure est extraite de leur dernier article, ces auteurs n'ayant pas publié les valeurs numériques de leurs résultats mais représenté directement sur des figures, et avec nos conventions, les écarts à nos valeurs expérimentales. Leur formule est de ce fait absente du tableau 28.

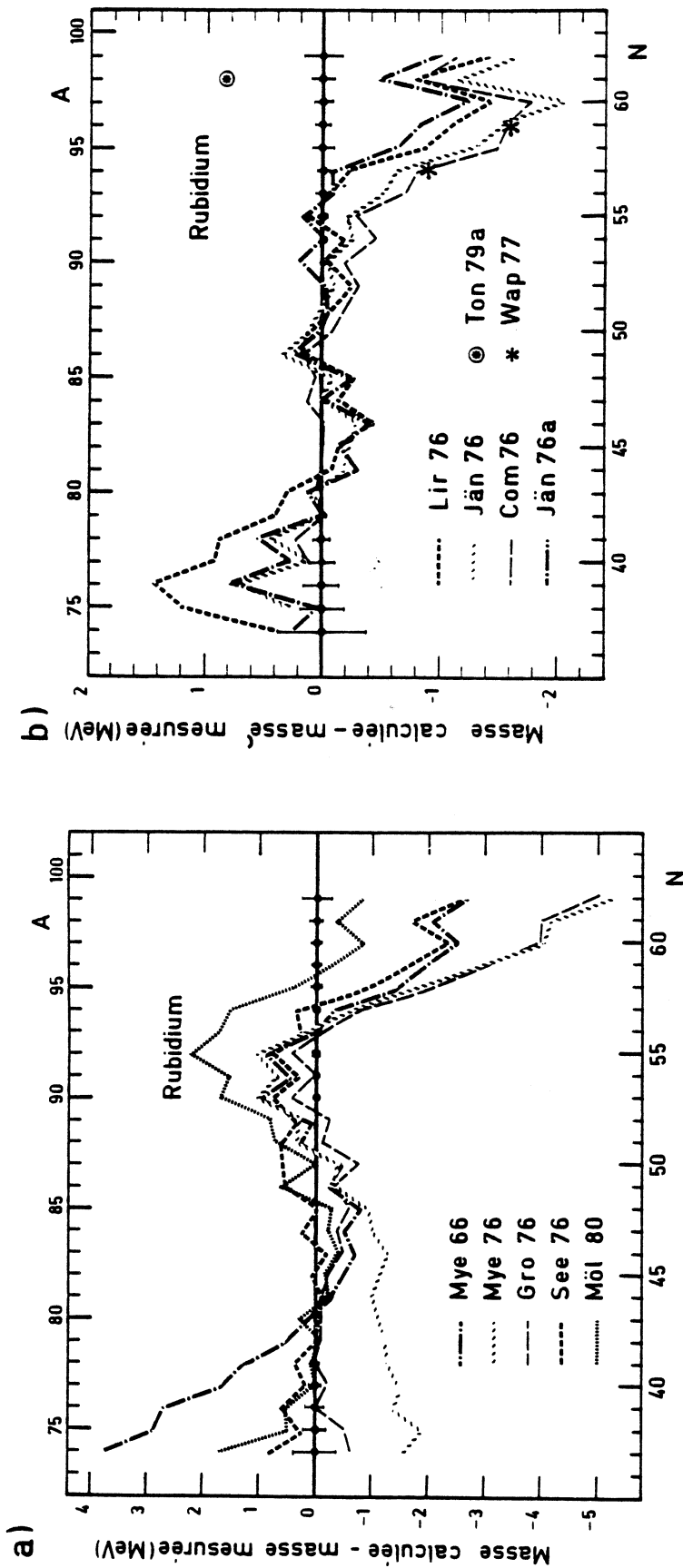


Figure 27 - Différences entre masses calculées et masses mesurées, pour les isotopes de Rb, en fonction du nombre N de neutrons.

a) Formules semi-empiriques de "goutte liquide" ;

b) Formule semi-empirique du "modèle des couches" ;

Relations locales du type "Garvey-Kelson" ;

Calcul "self-consistent" avec formalisme de la Densité d'Energie

"Systématiques" de Wapstra

Noter ici la différence d'échelle entre (a) et (b).

Les points expérimentaux et leurs barres d'erreur sont portés par la droite d'ordonnée nulle. En dessous de cette droite, les calculs prévoient des noyaux trop liés ; au-dessus, trop peu liés.

Remarquer en (a) la grande divergence de [Mye 66] seul, pour les "Rb légers", due à l'absence de terme en  $|N-Z|$ , dit terme de "Wigner".

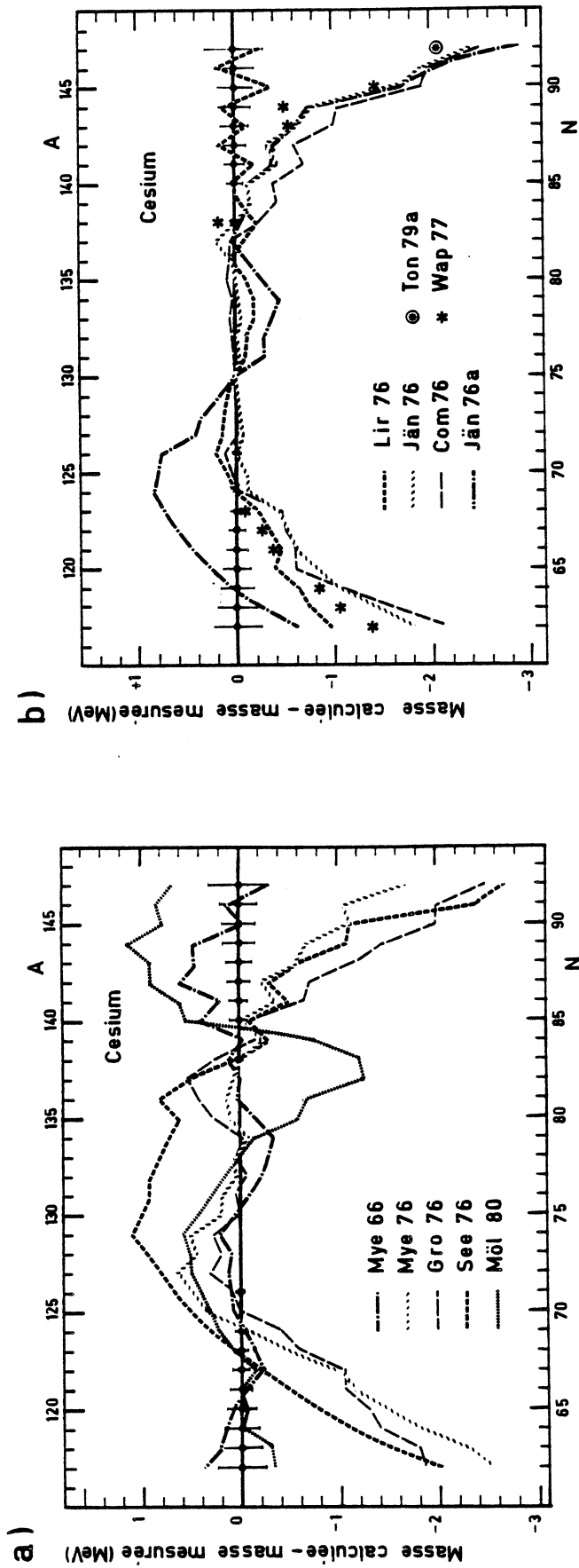


Figure 28 - Analogue de la figure 27, pour les isotopes de Cs. Remarquer ici l'excellent accord de [Mye 66] en (a) et de [Lir 76] en (b).

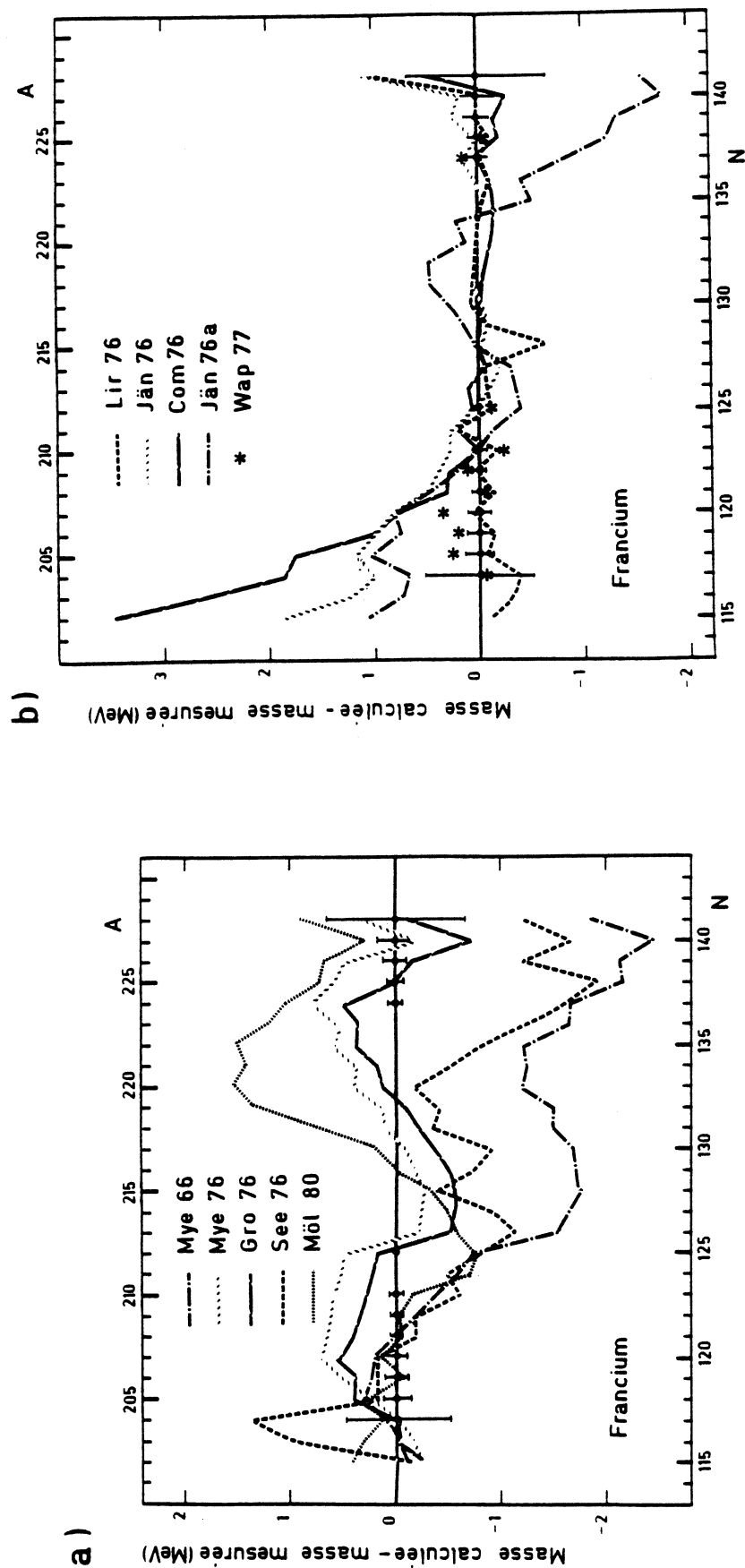


Figure 29 - Analogue de la figure 27, pour les isotopes de Fr.  
On peut remarquer en (b) le très bon accord avec l'expérience de la formule semi-empirique du "modèle des couches" de Liran et Zeldes, ainsi que la bonne estimation des masses inconnues par la "systématique" de Wapstra.

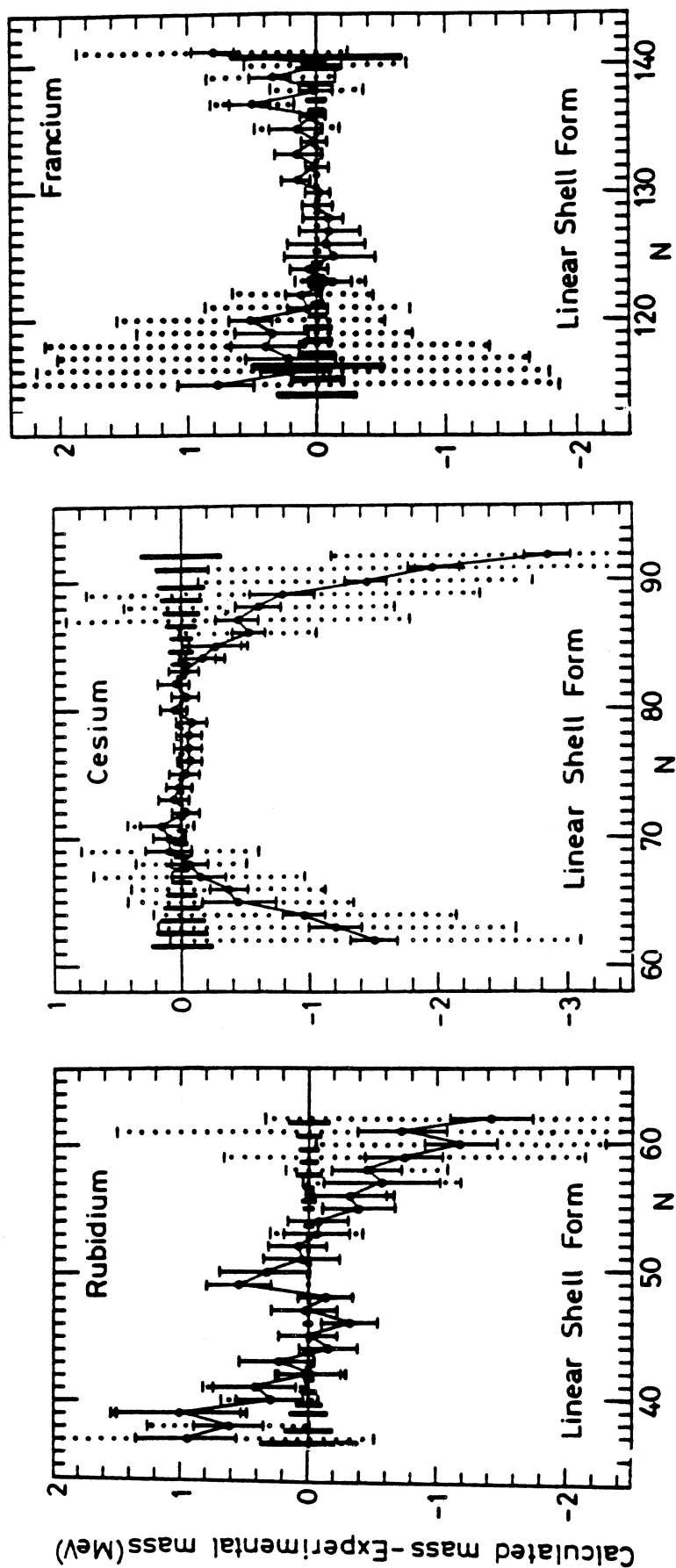


Figure 30 - Analogue de la figure 27 pour les calculs de Uno et Yamada. Cette figure est extraite des figures n° 7, 8 et 9 de [Uno 81a] pour les calculs avec "terme de couche linéaire". Les incertitudes expérimentales sont indiquées en gras ; les incertitudes théoriques "expérimentales" et "intrinsèques" sont indiquées respectivement en pointillé et par les traits fins.

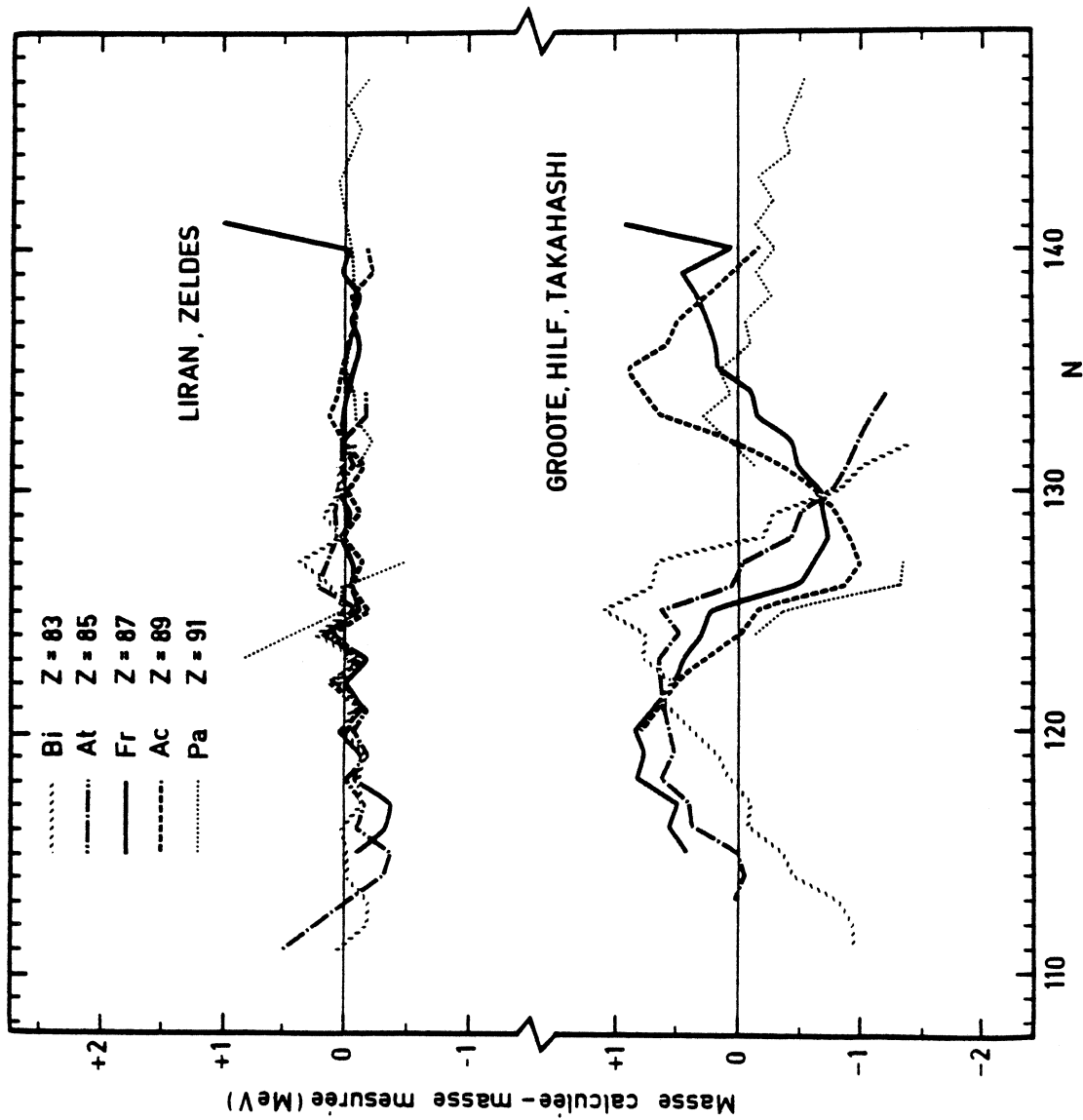


Figure 31 - Différences entre masses calculées et masses mesurées, pour les éléments impairs en protons, voisins de Fr, et pour les deux meilleures estimations du tableau 28 dans cette région: la formule semi-empirique de "goutte" liquide" de Groote et al., en bas; et la formule semi-empirique du "modèle des couches" de Liran et Zeldes, en haut.



**TABEAU 28** : Moyenne des écarts entre calcul et expérience séparément pour les masses connues et pour les masses que nous avons mesurées dans ce travail (en italique)  
n = nombre de valeurs moyennées

	n	[Mye66]	[Mye76]	[Gro76]	[See76]	[Mö180]	[Lir76]	[Jän76]	[Com76]	[Jän76a]
$^{37}\text{Rb}$	10	400	770	320	270	380	180	130	100	140
	16	1480	1820	1230	750	800	630	660	630	340
$^{55}\text{Cs}$	13	210	200	170	730	480	90	50	50	270
	18	200	730	900	740	420	210	630	740	580
$^{87}\text{Fr}$	14	1220	250	280	630	740	50	240	320	320
	13	700	430	260	690	300	70	380	430	660
REGION ( $N \leq 126$ ; $Z \geq 82$ )										
$^{83}\text{Bi}$	8	570	1590	800	1220	580	50	80	460	350
	8	150	820	290	1130	520	30	180	760	220
$^{85}\text{At}$	6	150	810	370	530	440	160	260	1000	120
	8	120	810	260	570	190	50	260	1010	330
$^{87}\text{Fr}$	4	530	170	170	580	350	80	720	910	420
	8	200	440	260	330	150	50	510	630	410
$^{89}\text{Ac}$	1	2110	1080	950	2000	490	0	10	80	1180
	6	530	140	130	1040	280	60	1030	640	500
$^{91}\text{Pa}$	0	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	3	1730	1440	890	2320	370	80	1080	520	2430
TOTAL	19	510	1020	540	910	480	90	270	700	340
	33	370	680	300	890	290	50	520	740	550

Deux autres estimations sont absentes également du tableau 28 de par le faible nombre de valeurs qui peuvent être comparées : celle de Tondeur pour  $^{98}\text{Rb}$  et  $^{147}\text{Cs}$  [Ton 79a] et les systématiques de Wapstra [Wap 77]. Les écarts des valeurs calculées aux résultats expérimentaux sont représentés, pour ces deux méthodes, sur les figures 27, 28 et 29.

Cette comparaison avec les prédictions peut être étendue à toute la région ( $N \leq 126$  ;  $Z \geq 82$ ) dans laquelle nous avons déterminé, directement ou indirectement les masses de 33 noyaux. Dans le tableau 28, les écarts moyens sont calculés également ici, pour chaque formule ou relation de masse, par élément, puis regroupés pour toute la région. Nous choisissons de présenter sur la figure 31 l'allure de ces écarts pour la formule de Liran et Zeldes [Lir 76] pour laquelle l'accord est excellent (moins de 50 keV) ainsi que pour une des formules du type "goutte liquide", celle de Groote, Hilf et Takahashi [Gro 76].

L'examen des différentes figures et du tableau appelle quelques remarques. D'une part les courbes sur ces figures croisent toutes, une ou plusieurs fois la droite d'ordonnée nulle donnant ainsi, localement, de très bons accords entre le calcul et l'expérience. Le tableau 28 permet d'autre part d'observer, dans la région ( $N \leq 126$  ;  $Z \geq 82$ ) que l'accord, pour une même formule ou relation de masse peut varier de façon importante d'un élément à l'élément voisin. Ceci met en évidence le danger qu'il y aurait eu à tirer des conclusions à partir d'un petit nombre de résultats. Nous nous attacherons, ici, à ne considérer que des comportements globaux des écarts entre masses mesurées et masses calculées.

Le premier fait qui ressort est que presque tous les calculs considérés ici reproduisent assez bien les masses des isotopes proches de la stabilité (pour lesquelles ils avaient été ajustés) mais divergent pour les isotopes les plus exotiques en prédisant, le plus souvent, de trop fortes énergies de liaison, ainsi qu'on peut le voir dans trois des régions étudiées : "Rb lourds", "Cs légers" et "Cs lourds", sur les figures 27 et 28.

Les formules de "goutte liquide" donnent des écarts moyens situés entre 200 et 700 keV pour les isotopes de masses connues de Rb, Cs et Fr (à l'exception de [Mye 66] pour Fr). Pour les masses que nous venons de mesurer et dans le cas de Rb et Cs ces écarts augmentent parfois de façon impor-

tante (jusque 1800 keV) ; par contre pour des noyaux où le nombre de nucléons est plus important (Cs, Fr et région des "Fr légers") et pour lesquels l'aspect macroscopique de la formule, dû à la goutte liquide donne des comportements plus réguliers, l'accord avec les masses que nous avons déterminées reste semblable à celui que ces formules avaient avec les masses connues. Notons (figures 27 et 28) que l'ancienne formule de Myers et Swiatecki [Mye 66] est plus proche des résultats expérimentaux que la plus récente [Mye 76] pour le Cs et aussi pour les "Rb lourds". Signalons enfin la très grande similitude de comportement de [Mye 76] et [Gro 76] qui est vraisemblablement due à des formulations très voisines.

Les relations locales du type Garvey-Kelson, même si elles donnent un accord qui est parfois excellent avec les masses connues, prédisent assez mal les masses que nous venons de mesurer, ainsi que l'on pouvait s'y attendre. L'écart passe de 100 ou 200 keV dans le premier cas, à 500 ou 700 keV dans le second. Les systématiques de Wapstra sont très proches des précédentes pour Rb et Cs, mais bien meilleures pour Fr et pour la région des "Fr légers" (écarts moyens meilleurs que 100 keV).

La formule semi-empirique, basée sur le modèle des couches, de Liran et Zeldes [Lir 76], enfin, réserve de très agréables surprises. Si la prédiction des masses des isotopes de Rb ( $Z = 37$ ) n'est ni meilleure ni pire que celle due à la plupart des autres calculs, celle pour les noyaux plus lourds de Cs ( $Z = 55$ ) est déjà une des meilleures avec 200 keV d'écart moyen et atteint, pour les noyaux encore plus lourds de Fr ( $Z = 87$ ), ainsi que dans la région ( $N \leq 126$  ;  $Z \geq 82$ ) un accord remarquable (68 keV et 46 keV !).

Nous en concluons que cette formule "Semi-Empirique basée sur le Modèle des Couches" de Liran et Zeldes possède un très bon pouvoir de prédiction et permet ainsi une bonne estimation des masses inconnues des éléments lourds.

## C H A P I T R E   E

### STRUCTURES NUCLEAIRES DEDUITES DE L'ETUDE DES DIFFERENCES FINIES

Les irrégularités de la surface de masse sont bien mises en évidence grâce à l'étude des différences de masses qui peuvent être établies à partir de cette surface.

La connaissance apportée par les masses de longues chaînes d'isotopes d'un même élément et s'éloignant fortement de la stabilité, est de ce point de vue essentielle par l'analyse des énergies de séparation de un ou de deux neutrons ( $S_n$  et  $S_{2n}$ ) et des énergies d'appariement ( $\Delta$ ).

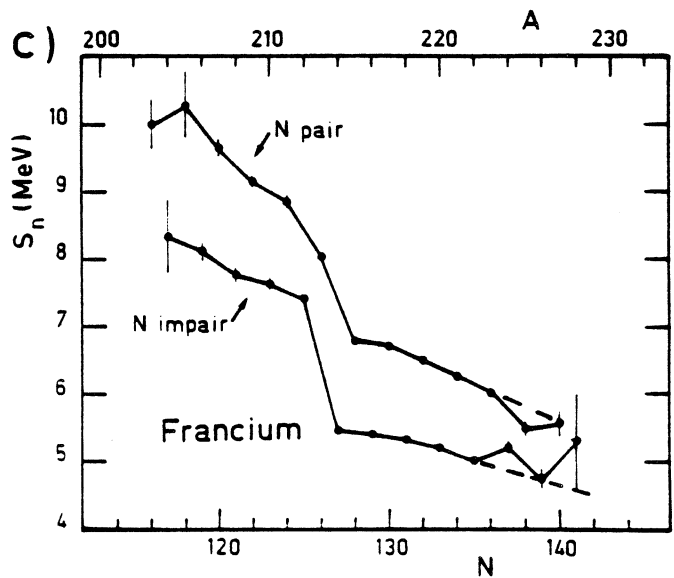
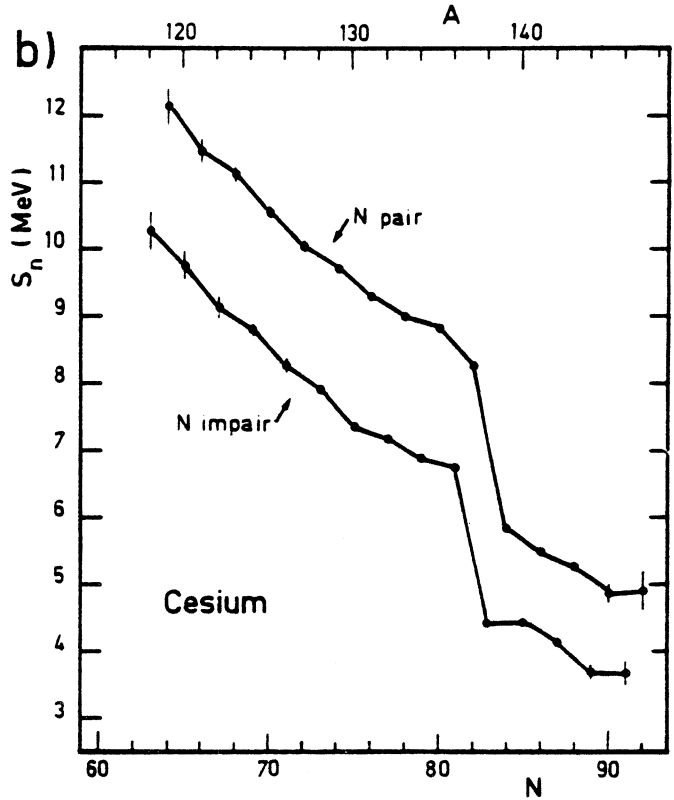
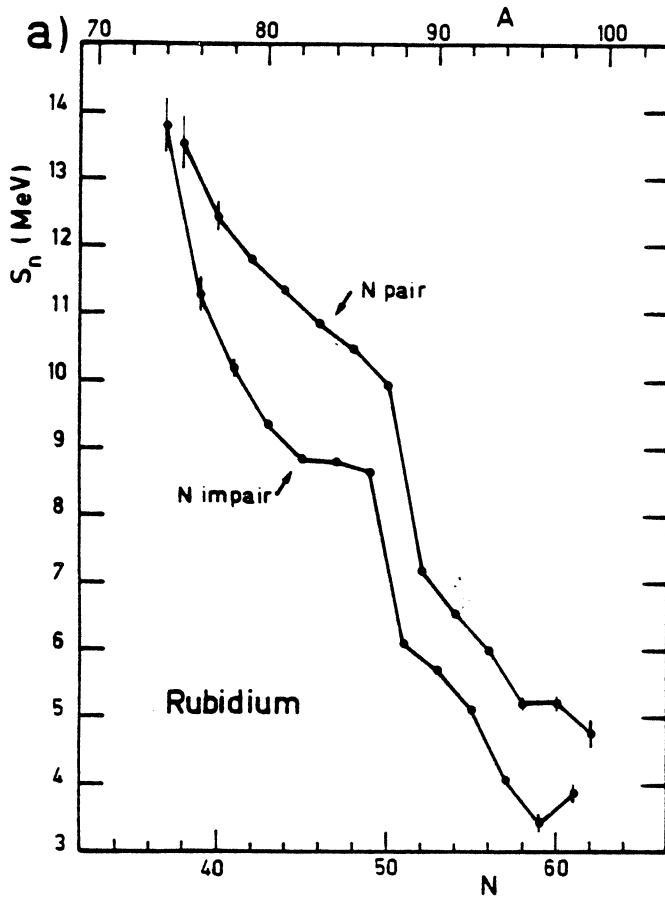


Figure 32 - Energies de Séparation du dernier neutron en fonction de  $N$  pour les éléments : a) Rubidium ( $Z=37$ )  
b) Césium ( $Z=55$ )  
c) Francium ( $Z=87$ )  
Les points de même parité, en  $N$ , sont joints entre eux pour éliminer l'allure fortement oscillatoire de ces courbes.

Dans chacune de ces études de différences, nous déduirons d'abord quelques informations tirées directement de l'expérience et qui ne dépendent pas d'un modèle particulier, et nous confronterons, ensuite ces informations aux prédictions des modèles du chapitre précédent.

## I - ENERGIES DE SEPARATION $S_n$ ET $S_{2n}$

Ce sont les premières différences finies que l'on puisse établir à partir des surfaces de masses. Elles sont définies par :

$$S_n(N,Z) = BE(N,Z) - BE(N-1,Z) \quad (E.1)$$

$$S_{2n}(N,Z) = BE(N,Z) - BE(N-2,Z) \quad (E.2)$$

$BE(N,Z)$  étant l'énergie de liaison de l'isotope  $N,Z$  (cf. Appendice 1).

Pour chacun des éléments Rb, Cs et Fr, les courbes donnant  $S_n$  en fonction du nombre  $N$  de neutrons sont représentées sur les figures 32 (a, b et c). Les points obtenus se répartissent sur deux courbes distinctes selon la parité de  $N$  et les distances qui séparent les courbes paires et impaires ainsi obtenues sont directement reliées aux énergies d'appariement que nous étudierons au paragraphe suivant.

L'étude du comportement des énergies de séparation,  $S_n$  pourra être menée soit en parallèle sur chacune des courbes paire et impaire, soit, pour s'affranchir de l'effet pair-impair, sur l'énergie de séparation de la dernière paire de neutrons  $S_{2n}$ . Cette dernière quantité est représentée sur les figures 33 (a, b et c) pour chacun des éléments Rb, Cs et Fr, ainsi que pour leurs voisins. Pour ces derniers nous prenons les valeurs expérimentales des tables de masses [Wap 77] (en excluant donc les valeurs estimées notées SYST).

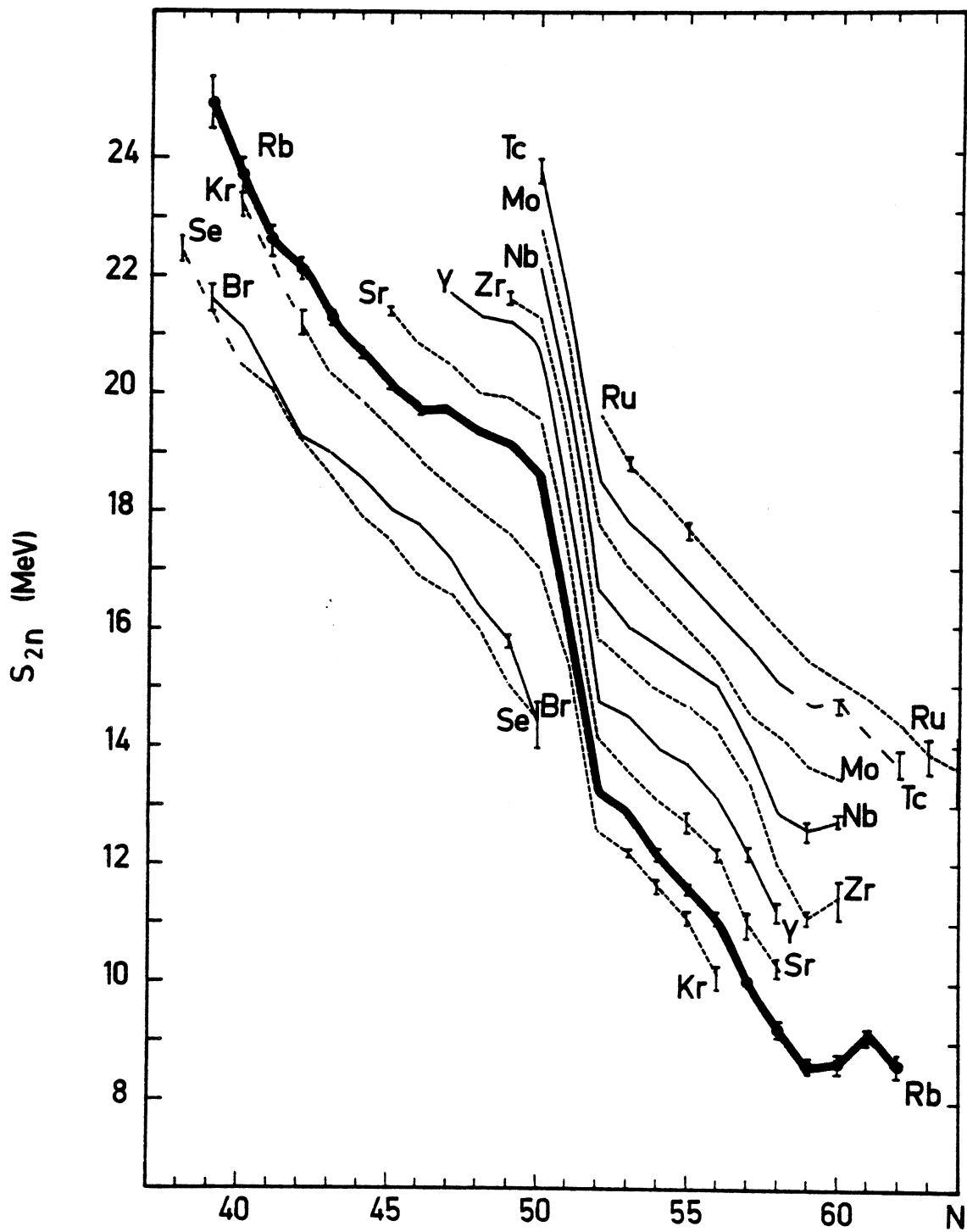


Figure 33a - Energies de Séparation de deux neutrons ( $S_{2n}$ ) pour les isotopes de rubidium et des éléments voisins [Wap77]<sup>2n</sup>. On peut noter la légère inflexion des courbes à  $N=56$  qui traduit la fermeture de la sous-couche  $2d_{5/2}$  [Zel 67a] (voir page 149), et à  $N=60$  l'esquisse d'une remontée des courbes Zr et Nb.

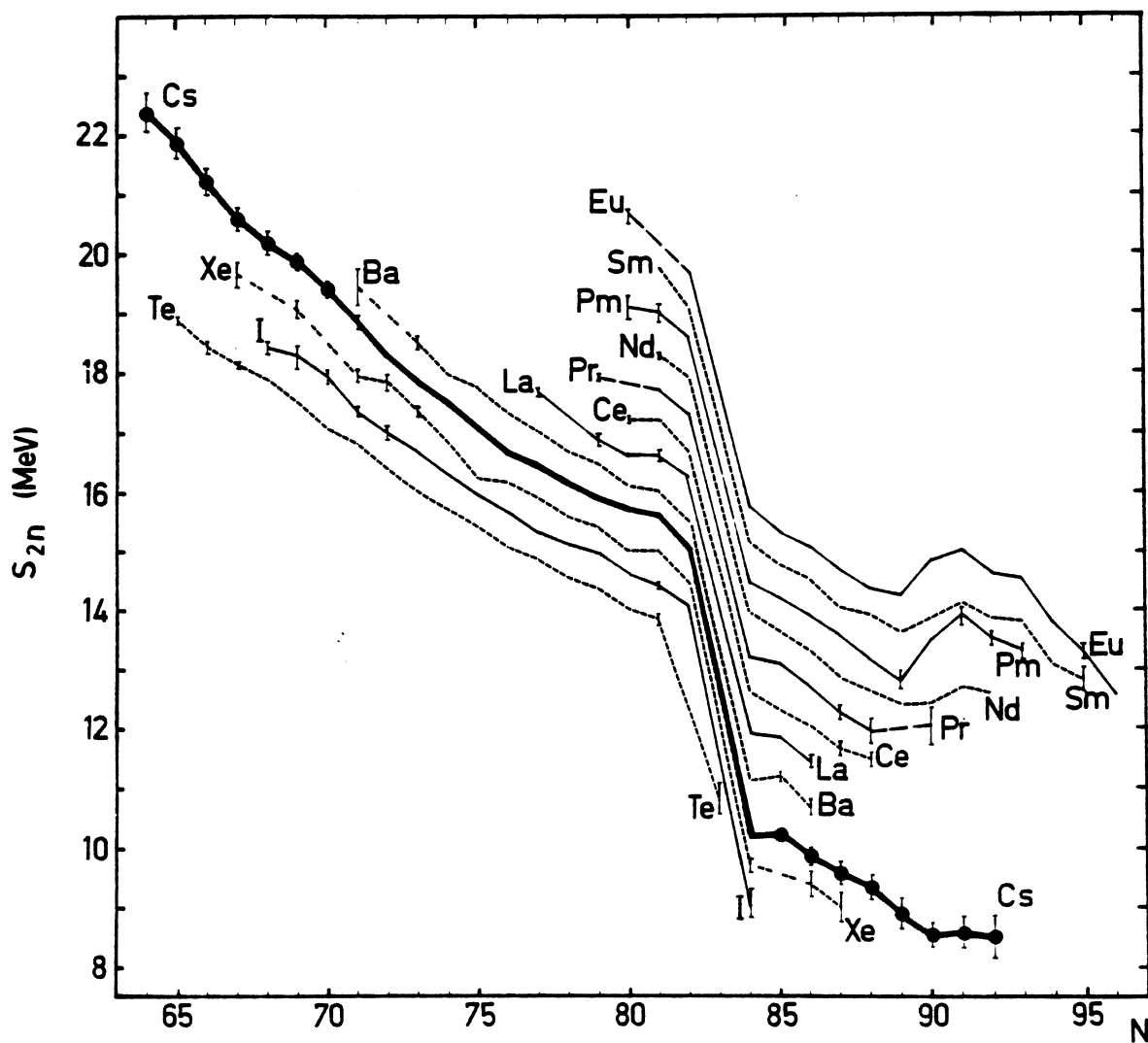


Figure 33b - Energies de Séparation de deux neutrons ( $S_{2n}$ ) pour les isotopes de césium et des éléments voisins [Wap 77].  
On peut noter vers  $N=90$ , les déformations bien connues des terres-rares, qui se traduisent par les fortes remontées des courbes Pm, Sm et Eu.



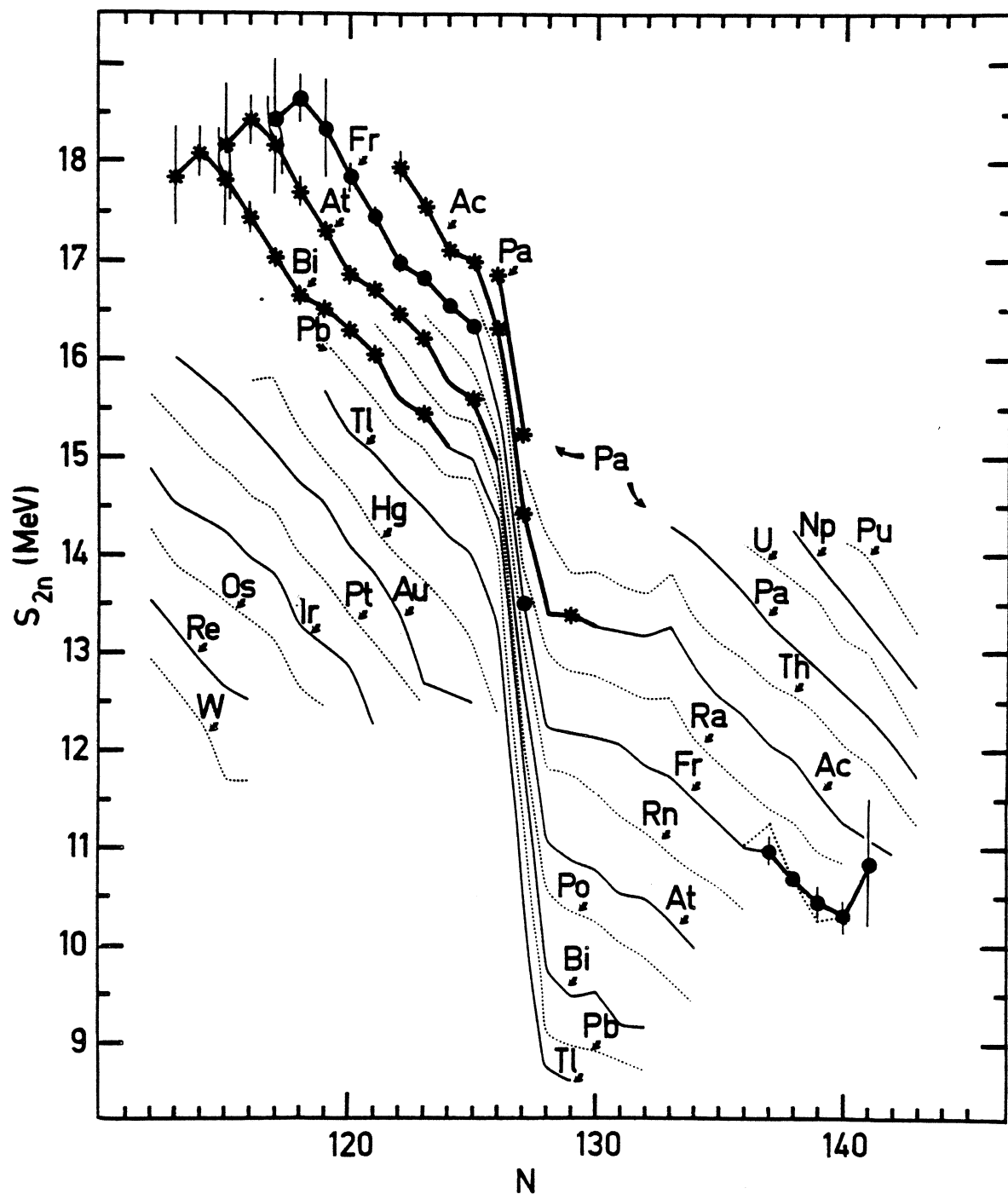


Figure 33c - Energies de Séparation de deux neutrons ( $S_{2n}$ ) pour les isotopes de francium (mesures directes représentées par les points) de Bi, At, Ac et Pa ("masses secondaires" représentées par des étoiles) et d'autres éléments voisins [Wap 77].

Dans les figures 32a et 33a, nous avons inclus la masse de  $^{73}\text{Rb}$ . Cette dernière est estimée à partir de celle du noyau miroir  $^{73}\text{Kr}$  ( $Z = 36$ ,  $N = 37$ ) en calculant le déplacement coulombien [D'Au 77], [Tou 77] :

$$M.E.(^{73}\text{Rb}) = -46255 \pm 140 \text{ keV}$$

Les courbes  $S_n$  et  $S_{2n}$  étant relativement régulières, les accidents qui apparaissent peuvent être associés à des changements de structure nucléaire. Nous allons à présent examiner successivement les deux caractéristiques essentielles qui apparaissent sur ces courbes et qui sont d'une part les décroissances brusques, en fonction de  $N$ , liées aux fermetures de couches ; et, d'autre part, les remontées, qui ont pu généralement être mises en relation avec des transitions de forme des noyaux, grâce à d'autres résultats expérimentaux.

### 1) Effets de Couches

#### a - Couches Majeures

Une des manifestations les plus directes de la structure en couche des noyaux [Boh 69] a été l'observation de la chute brutale de l'énergie de séparation du dernier nucléon ou de la dernière paire, quand une nouvelle couche commence à se remplir (après  $N = 50$ ,  $82$  ou  $126$ , sur les figures 32 et 33). L'amplitude de ces discontinuités donne une idée quantitative de la "force" de l'effet de couche :  $2.1 \text{ MeV}$  à  $N = 50$  pour  $\text{Rb}$  ;  $2.2 \text{ MeV}$  à  $N = 82$  pour  $\text{Cs}$  ; et  $1.4 \text{ MeV}$  à  $N = 126$  pour  $\text{Fr}$ .

#### b - Sous-Couches

##### Fermeture à $N = 56$ de la sous-couche $2d_{5/2}$

En ce qui concerne les isotopes de  $\text{Rb}$ , nous pouvons observer, sur les figures 32a pour  $S_n$  et 33a pour  $S_{2n}$ , la reproduction, après  $N = 56$ , mais fortement atténuée, de la structure bien connue à  $N = 50$ . En effet, les  $S_n$  et  $S_{2n}$  des isotopes ayant 57 et 58 neutrons sont plus faibles que ne le laisse penser l'allure des courbes avant  $N = 56$  : un ajustement linéaire sur

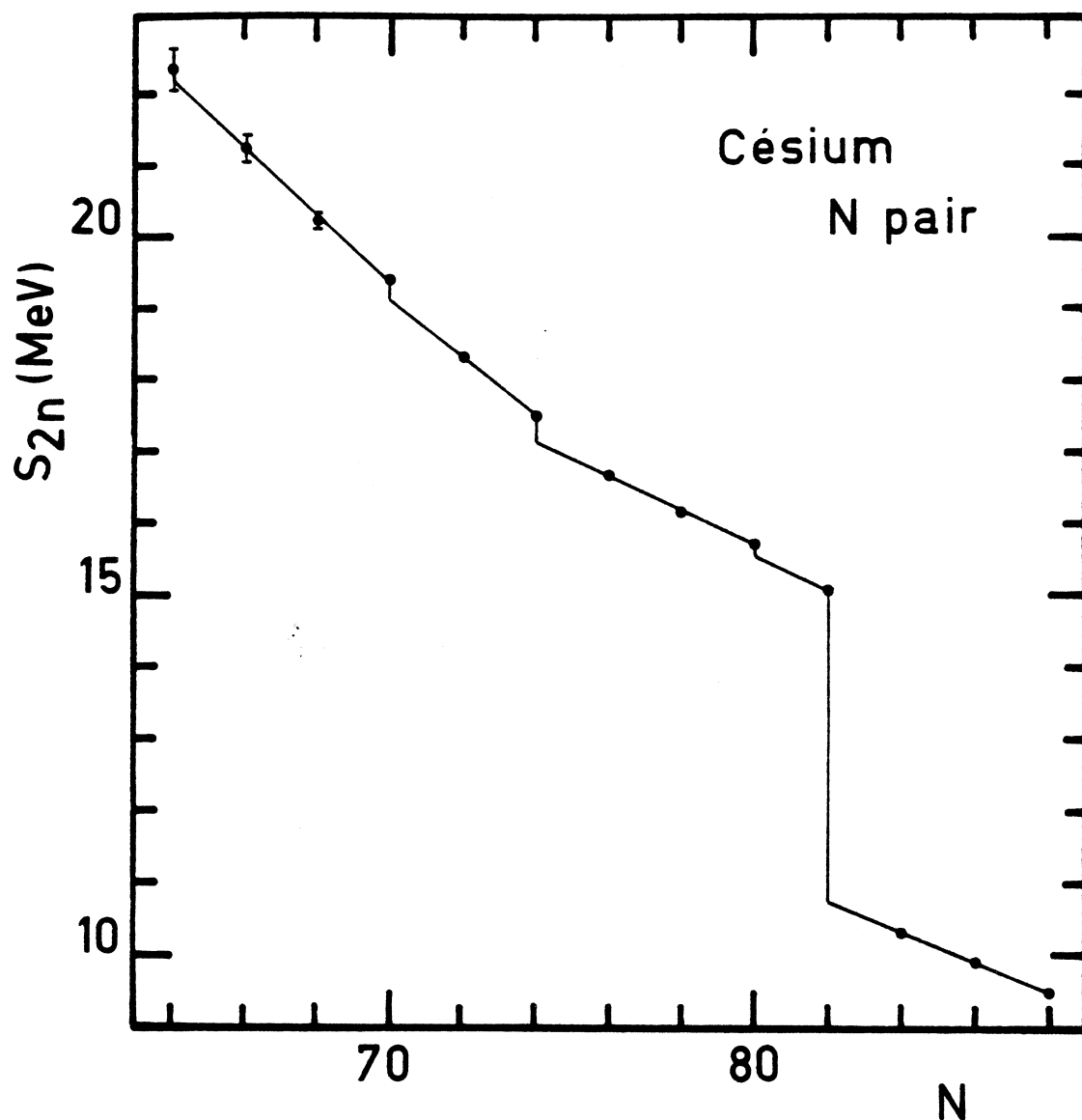


Figure 34 - Energies de séparation de la dernière paire de neutrons, des isotopes de N pair de Cs. Cette courbe indique, à la fin de chaque remplissage de niveau, une structure analogue à celle de la fermeture de la couche majeure, mais fortement atténuée. D'après R.C. Barber [Bar 81].

l'ensemble des 6 points  $N = 53$  à  $58$ , donne un très mauvais accord ( $WVF^2 = 5.7$ ). Par contre des ajustements séparés donnent des accords excellents.

Ce comportement peut être attribué à la fermeture, à 56 neutrons, de la sous-couche  $2d_{5/2}$ , qui pourrait être renforcée ici par la proximité de la fermeture à  $Z = 40$  de la sous-couche en protons  $2p_{1/2}$ . La "force" de cet effet de couche est d'environ 0.55 MeV, soit 4 fois plus faible que l'effet de couche à  $N = 50$ .

Cette fermeture de sous-couche à  $N = 56$  avait été déjà mise en évidence, pour les noyaux voisins, par la mesure des spins et parités des états fondamentaux des isotopes de  $^{38}\text{Sr}$  et  $^{40}\text{Zr}$  [Mon 76] ; par le maximum d'énergie d'excitation à  $N = 56$  des états  $9/2^+$  des isotopes de  $^{39}\text{Y}$  et  $1/2^-$  des isotopes de  $^{41}\text{Nb}$  [Mon 76] ; par la mesure des déformations quadrupolaires  $\beta_2$  des isotopes de Zr (déterminées à partir de l'étude des états  $0_2^+$ ) [Kha 76] ; par la mesure de l'énergie  $E(2^+)$  et du rapport  $E(4^+)/E(2^+)$  des Sr, Zr et Mo [Che 70], [Kaf 76], [Wol 77] et [Sak 77] et enfin plus récemment, par la mesure des rayons de charge nucléaire des isotopes de Mo à partir de rayons-X muoniques [Woh 79]. Une compilation des  $Q_\beta$  et un tracé des diagrammes de Way et Wood [Key 78] permettent également d'observer un effet à  $N = 56$  pour Rb, Sr et Y.

Sur la figure 33a, cette rupture de la courbe  $S_{2n}$  à  $N = 56$ , est également visible pour ces éléments voisins : Sr, Y, Zr et surtout Nb.

#### Autres Effets de Sous-Couche

La considération des courbes  $S_{2n}$  pour  $N$  pair seul peut permettre de mettre en évidence [Bar 81] une structure très fine qui peut être reliée aux fermetures des sous-couches. Une illustration en est donnée à la figure 34 pour Cs, où l'on reconnaît, à  $N = 70$ , 74 et 80 des structures analogues à celle due à la fermeture de couche majeure à  $N = 82$  avec des sauts de  $S_{2n}$  respectivement de 0.3, 0.4 et 0.2 MeV. Il existe de même de telles structures pour Rb (non représenté ici) à  $N = 48$  et, évidemment, à  $N = 50$  (couche majeure) et  $N = 56$ , avec des sauts de  $S_{2n}$  respectifs de 0.3, 4.3 et 1.2 MeV.

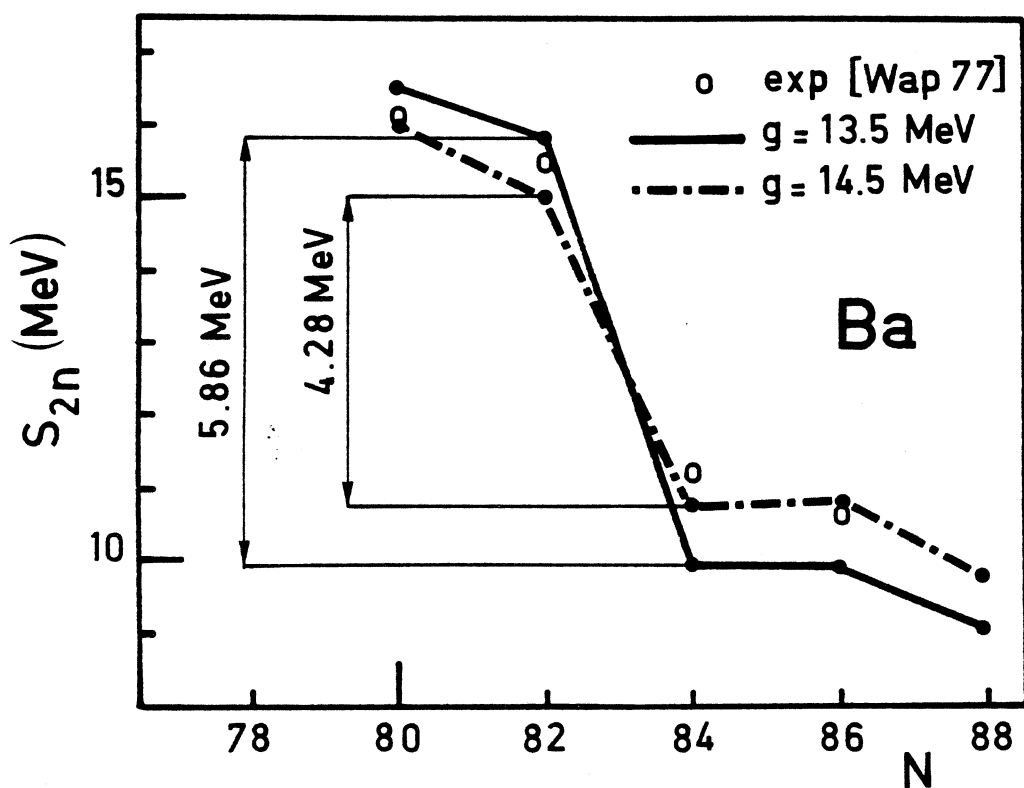


Figure 35 - Sauts de  $S_{2n}$  calculés avec une force "effective" SKYRME VI, pour deux valeurs de la constante d'appariement  $g$ . L'amplitude du saut expérimental est mieux reproduite pour  $g = 14.5$  MeV.

## c - Comparaison avec les Modèles

### Effets de Couche

Les amplitudes des sauts des  $S_n$  et  $S_{2n}$  sont, en général, très bien reproduites aux fermetures de couches par les formules semi-empiriques et les relations de masses (voir plus loin, les figures 39 et 44 ; pages 154 et 162).

Dans les calculs Hartree-Fock avec une force Skyrme VI, pour Kr et Sr [Cam 80] la constante d'appariement  $g$  avait été ajustée pour reproduire l'amplitude du saut de  $S_{2n}$  :  $g = 13.5$  MeV. Dans nos calculs pour Cs, ce saut à la fermeture de couche à 82 neutrons :

$$\Delta S_{2n}(82, Z) = S_{2n}(82, Z) - S_{2n}(84, Z) \quad (E.3)$$

apparaît surestimé :  $\Delta S_{2n}$  vaut, expérimentalement, 4.36 MeV pour Ba. Ici nous obtenons par le calcul, pour ce même Ba, 5.86 MeV. Une possibilité d'agir sur cette dernière valeur consiste à faire varier la constante  $g$  de pairing : l'accord est obtenu pour  $g = 14.5$  MeV (figure 35). Nous avons cependant gardé, dans tous nos calculs une valeur de  $g = 13.5$  MeV, avant tout par souci d'homogénéité avec les calculs effectués pour les isotopes de Kr et Sr, et aussi parce que la diminution obtenue sur  $\Delta S_{2n}$  grâce à l'accroissement de  $g$  est un effet concomitant, qui ne traduit aucunement la réelle nécessité d'une force d'appariement plus forte. Il eût fallu agir sur les paramètres de la force de SKYRME elle-même, ce qui déborde le cadre de notre travail.

### Sous-Couche $2d_{5/2}$

La fermeture de la sous-couche à  $N = 56$ , que nous avons mise en évidence expérimentalement, n'apparaît pas à travers les formules et relations classiques (figures 39 et 44). Ceci n'a rien de surprenant pour les formules semi-empiriques basées soit sur le modèle de la goutte liquide, soit sur le modèle des couches, étant donné que cette information n'avait pas été introduite dans les calculs.

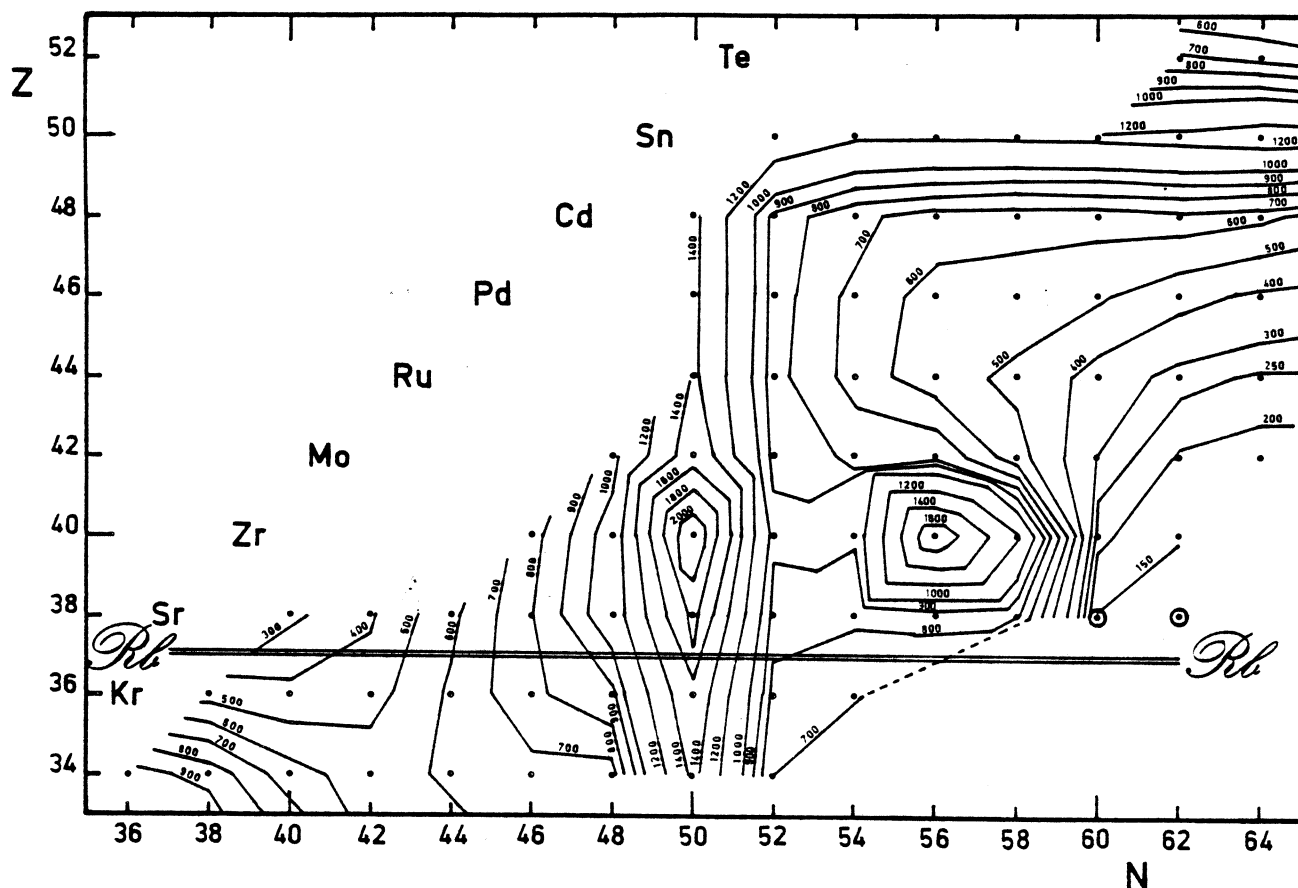


Figure 36 - Courbes de niveaux, dans le plan (N,Z) des énergies  $E(2^+)$  expérimentales des noyaux pairs-pairs au voisinage du rubidium.

Points : valeurs expérimentales prises dans les tables de SAKAI [Sak 77]

Cercles pointés : mesures récentes [Wol 77] et [Azu 79] pour Sr

Double trait : extension dans ce plan (N,Z) de nos mesures de masses des isotopes de Rb.

*Signalons cependant ici, que c'est N. Zeldes qui, le premier a suggéré cette fermeture de sous-couche  $2d_{5/2}$  pour Zr et Mo, à partir de l'étude systématique des  $S_{2n}$  [Zel 67a], mais a volontairement ignoré cette "semi-magicité" dans sa formule [Lir 76], la jugeant de validité limitée.*

En ce qui concerne les relations locales, les données existantes au moment où ces relations ont été calculées ne sous-tendaient pas nettement cet effet de sous-couche (les masses de  $^{36}\text{Kr}$ ,  $^{37}\text{Rb}$ ,  $^{38}\text{Sr}$ ,  $^{39}\text{Y}$ , n'étaient connues que jusque  $N = 55$  ou  $56$ , et seules les masses de  $^{40}\text{Zr}$ ,  $^{41}\text{Nb}$ ,  $^{42}\text{Mo}$  et au delà dépassaient  $N = 57$ ).

En revanche, des calculs issus de méthodes plus fondamentales ont pu décrire l'existence de cette "semi-magicité" à  $N = 56$ . Le modèle des couches de Nilsson reproduit cette fermeture de sous-couche à  $N = 56$  pour Kr ( $Z = 36$ ), Sr ( $Z = 38$ ) et Zr ( $Z = 40$ ) [Rag 80a] mais en détériorant la description des isotopes plus lourds. Le formalisme de la Densité d'Energie permet [Ton 81], grâce à une bonne reproduction du schéma des couches de faire apparaître un effet de sous-couche à  $N = 56$  pour Zr avec un saut d'énergie (1.62 MeV) comparable au saut expérimental (1.58 MeV). Enfin, les calculs HF, avec la force SKYRME VI des masses des noyaux de Kr et Sr donnent des sauts des énergies  $S_{2n}$  à  $N = 56$  quasi-identiques aux sauts expérimentaux ([Cam 80] ; figure 3a).

## 2) Déformations

Des remontées dans les courbes d'énergie de séparation de neutrons avaient été observées tout d'abord dans la région des terres-rares [Bar 64] à partir de  $N = 90$  (figure 33b) et plus tard pour les isotopes de sodium très riches en neutrons à partir de  $N = 20$  [Thi 75].

Dans les deux cas, ces anomalies avaient pu être mises en relation avec l'apparition brusque (quand  $N$  croît) de noyaux déformés (voir [Joh 57], [Bar 64] et [Cam 75]).

*Il nous faut faire remarquer ici, tout d'abord que la mesure de la masse, donc de l'énergie totale du noyau, ne peut refléter un seul aspect de la structure nucléaire. Par ailleurs, si un changement de forme du noyau ne se justifie que par un gain en énergie de liaison, ce gain n'est pas forcément visible s'il est trop progressif ou si la déformation apparaît pour  $N$  décroissant (étant donné que les pentes des courbes  $S_n$  et  $S_{2n}$ , déjà très fortes en valeur absolue, doivent encore s'accroître).*



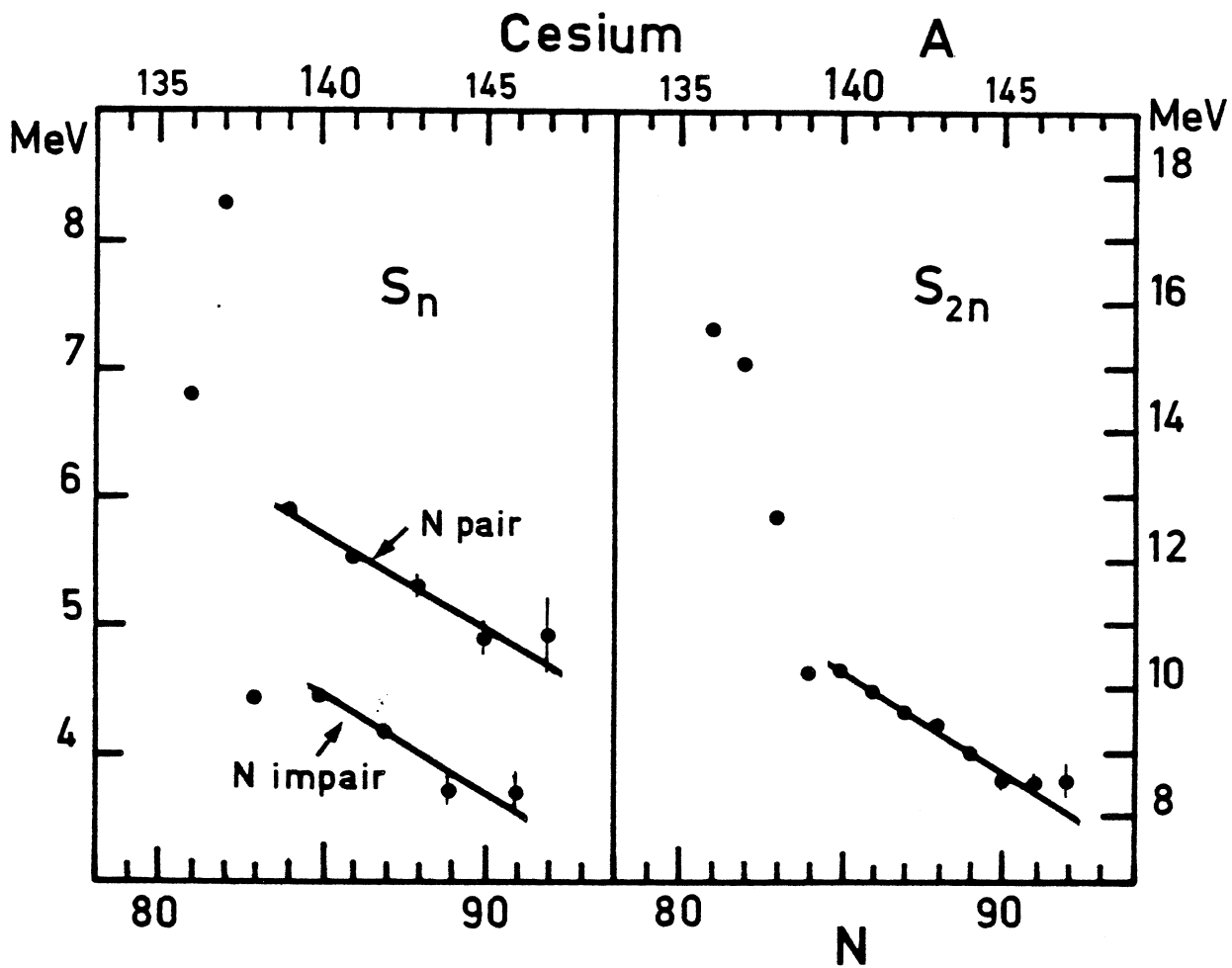


Figure 37 - Ajustements linéaires, avec le programme ZIDFIT [Zai 81] des courbes  $S_n$  et  $S_{2n}$  des isotopes de Cs riches en neutrons. Les pentes des droites ajustées sont, pour  $S_n$ , de  $-155\text{keV/N}$  et pour  $S_{2n}$ , de  $310\text{keV/N}$ . Les "WVF" des ajustements sont, respectivement pour  $S_n$  (N pair),  $S_n$  (N impaire) et  $S_{2n}$  : 0.71, 1.11 et 1.55. Sans les deux derniers points ( $N = 90$  et  $91$ ), les "WVF" valent : .65, 1.10 et 1.10.

Dans les deux cas cités plus haut, ainsi que dans deux autres que nous étudierons par la suite, c'est le caractère brusque de la transition de forme pour  $N$  croissant qui permet à celle-ci de se refléter sur les courbes  $S_{2n}$ .

Par contre, dans le cas des "Rb légers", si l'on considère les énergies  $E(2^+)$  des premiers niveaux excités  $2^+$  (figure 36) et qu'on leur applique le critère de déformation défini par Alder, Bohr et Mottelsson [Ald 56], selon lequel les noyaux pairs-pairs ayant  $E(2^+)$  inférieur à l'énergie critique :

$$E(2^+)_{\text{crit}} = \frac{13h^2}{J_{\text{rigide}}} \quad (\text{E.4})$$

seraient déformés, nous voyons que les isotopes de Rb de moins de 44 neutrons devraient être déformés ( $E(2^+)_{\text{crit}} \approx 600$  keV). Ceci ne se traduit pas de façon évidente sur les courbes  $S_n$  ou  $S_{2n}$  (figures 32a et 33a). (Une telle déformation est prévue également par les calculs de Sheline [She 76]).

De même, les noyaux les plus déficients en neutrons au voisinage du Cs approchent l'énergie critique (environ 300 keV) (figure 38) mais de façon tellement lente qu'aucun phénomène important n'apparaît sur les courbes  $S_n$  ou  $S_{2n}$ . La transition aurait probablement été plus flagrante dans une autre direction dans le plan  $(N, Z)$ , par exemple à  $N$  constant ou à  $N+Z$  constant.

Nous allons étudier à présent deux cas, où dans nos résultats de telles remontées semblent se manifester : dans la région des isotopes de Cs riches en neutrons et dans celle des isotopes de Rb riches en neutrons également.

#### a - Césium au Voisinage de $N = 90$

Etant donné que nos mesures des masses des isotopes du césium ont pu être étendues jusque  $N = 92$ , nous sommes en droit de nous demander si la transition de forme des terres-rares, évoquée plus haut et qui est visible sur la figure 33b entre Pr ( $Z = 59$ ) et Dy ( $Z = 66$ ), à  $N = 90$ , s'étend jusqu'à des valeurs de  $Z$  aussi faibles que celle de Cs ( $Z = 55$ ).

Les énergies de séparation pour Cs (figures 32b et 33b) laissent entrevoir, en effet, au delà de  $N = 91$  (et non plus de 90) une telle possibilité :

i) les courbes  $S_n$  paires et impaires arrêtent, toutes deux, leur décroissance à  $N = 92$  et  $N = 91$ , mais restent compatibles, vu les incertitudes, avec des droites ajustées respectivement de  $N = 86$  à 92 et de  $N = 85$  à 91 ( $WVF^2 = 1.02$  et 1.10) (figure 37) ;

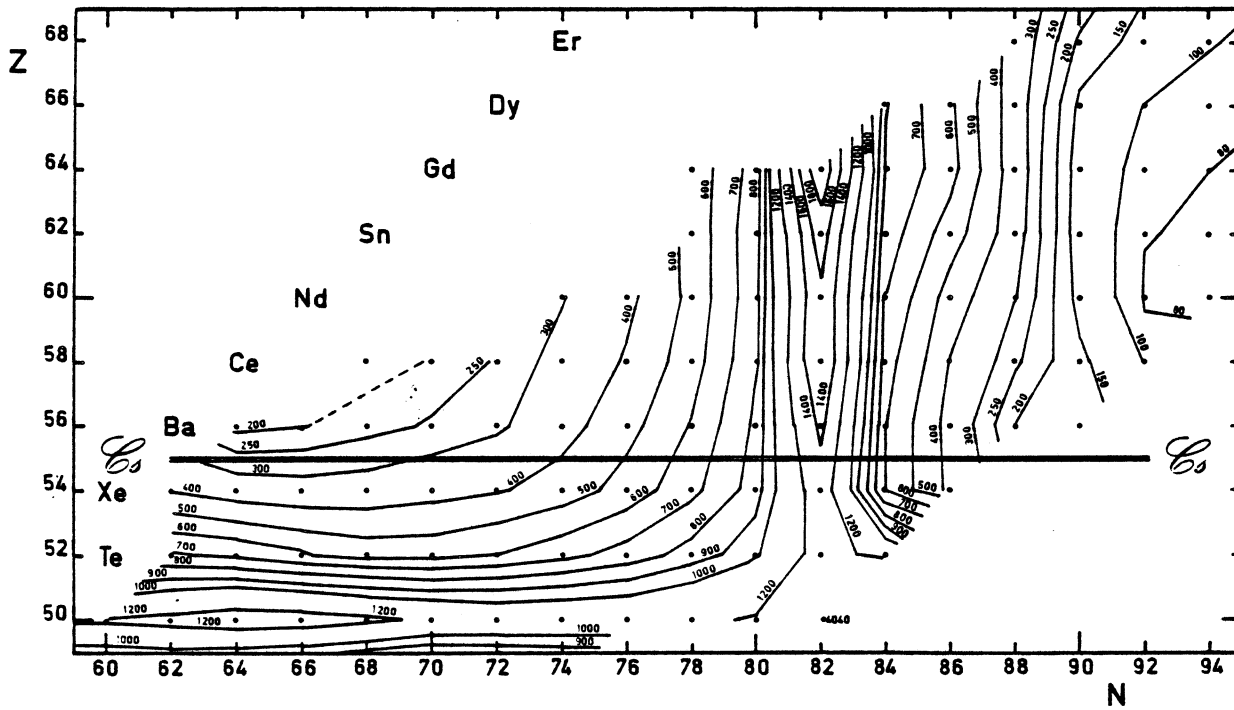


Figure 38 - Courbes de niveaux, dans le plan (N,Z) des énergies  $E(2^+)$  expérimentales des noyaux pairs-pairs au voisinage du césium.

Points : valeurs expérimentales prises dans les tables de SAKAI [Sak 77]

Double trait : extension dans ce plan (N,Z) de nos mesures de masses des isotopes de Cs.

ii) la courbe  $S_{2n}$  en revanche ne tolère pas bien un tel ajustement linéaire ( $WVF^2 = 2.1$ , pour une droite de  $N = 85$  à  $92$ , les contributions essentielles venant des deux derniers points), suggérant ainsi, une rupture de pente à  $N = 91$  (ou à la rigueur à  $N = 92$ , vu les incertitudes expérimentales).

Cette rupture pourrait correspondre pour  $Z = 55$ , à celle bien connue et bien plus nette des terres-rares, mais qui serait décalée d'un neutron ou deux. Nous serions ainsi en présence, ici pareillement, d'une transition de forme des noyaux.

D'autres résultats expérimentaux concernant les noyaux voisins sont en faveur, également, d'une transition de forme dans cette région. Ainsi les énergies  $E(2^+)$  des noyaux pairs-pairs (figure 38) laissent entrevoir, par extrapolation des équipotentielles, que l'énergie critique d'Alder [Ald 56] (200 keV) est franchie, pour Cs, quelque part entre  $N = 88$  et  $N = 92$ . Les rapports  $E(4^+)/E(2^+)$  pour ces mêmes noyaux pairs-pairs ([Rag 74] [Mon 76a] et [Sak 77]) toujours par extrapolation, indiquent également comme l'avait fait observer dès 1970 E.Cheifetz [Che 70a], qu'en dessous de  $Z = 60$ , la transition de forme serait plus "douce" que pour les terres-rares et que ce rapport atteindrait 3.0 (rapport 3.33 pour un rotor parfait) vers  $N = 92-94$  au lieu de  $N = 90$ . Cependant l'évolution des comportements pour  $Z = 54, 55, 56$  et  $57$  semble variable. Des résultats récents permettent d'affirmer que :

- i) à  $Z = 58$  (cérium), la déformation est beaucoup plus progressive que dans le cas des terres-rares [Gow 81] et commence à se manifester dès  $N = 84$ . Bien qu'à  $N = 88$ ,  $^{146}\text{Ce}$  soit plus déformé que les isotones de  $Z \geq 60$ , la transition de forme n'intervient qu'à  $N = 90$  et certainement pas avant ([Gil 81] à TRISTAN) ;
- ii) à  $Z = 56$  (baryum) les isotopes  $N = 88$  et  $N = 90$  ont des structures de niveaux très voisines [Pin 79] [Mon 81] ; Scott et al. [Sco 79] et [Sco 80] (ILL, Grenoble) indiquent que la transition de forme pour Ba intervient à  $N = 88$ , elle est donc plus précoce que pour des  $Z$  plus élevés ; [Schu81] montre que dans la chaîne isobarique impaire  $A = 147$ , Ba (avec  $N = 91$ ) est le plus déformé.

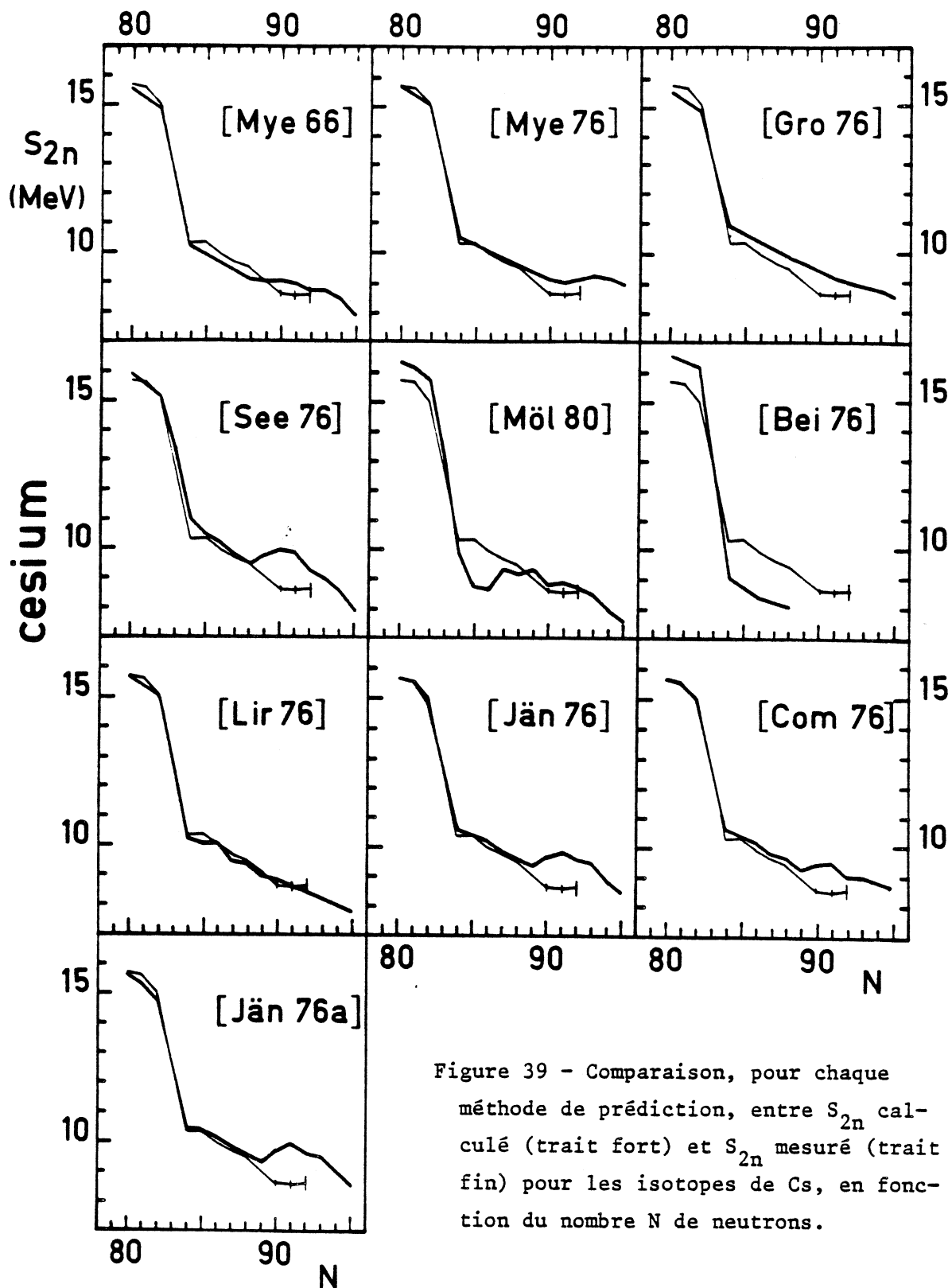


Figure 39 - Comparaison, pour chaque méthode de prédiction, entre  $S_{2n}$  calculé (trait fort) et  $S_{2n}$  mesuré (trait fin) pour les isotopes de Cs, en fonction du nombre  $N$  de neutrons.

iii) à  $Z = 55$  (césium) des résultats récents de spectroscopie atomique [Thi 81a] montrent que la variation du rayon de charge est très régulière jusqu'au dernier isotope étudié  $N = 90$ , indiquant donc qu'aucune transition brutale de la forme des noyaux n'apparaît avant  $N = 91$ .

De l'ensemble de ces observations et de nos résultats expérimentaux, la situation semble être la suivante : la transition, très brutale pour les isotopes de  $^{62}\text{Sm}$ ,  $^{64}\text{Gd}$  et  $^{66}\text{Dy}$ , à  $N = 90$ , s'atténue considérablement en-dessous de  $Z = 60$ . La valeur de  $N$  pour laquelle la variation de forme est alors la plus importante, semble varier d'un élément à l'élément voisin : pour  $^{58}\text{Ce}$  elle se maintient à 90 ; pour  $^{56}\text{Ba}$  elle descend à 88 puis pour  $^{55}\text{Cs}$  remonte à 91 (ou 92).

#### Comparaison avec les Prédictions Classiques

Les relations de masses et les formules semi-empiriques classiques prédisent diversement cette transition de forme pour Cs, comme on peut le constater sur la figure 39.

Les premières, parce qu'elles extrapolent les caractères connus des terres-rares, donnent ici une transition de forme aussi brutale et qui survient aussi tôt que pour celles-ci, à  $N = 90$ .

Les formules semi-empiriques basées sur le modèle de la goutte liquide prédisent cette déformation en fonction essentiellement du terme de correction de couche utilisé. La méthode dite du "bunching" chez [Mye 66], [Mye 76] et [Gro 76] donne des transitions relativement douces et qui apparaissent à  $N = 89$  pour la première et  $N = 92$  pour les deux autres. La méthode de Strutinsky appliquée au modèle de NILSSON [See 76] donne une transition très brutale et qui apparaît à 89 neutrons. La formule de Möller et Nix donne à la courbe  $S_{2n}$  une allure erratique qui ne permet pas de discerner l'effet d'une transition de forme éventuelle.

La formule semi-empirique basée sur le modèle des couches, enfin, donne à la courbe  $S_{2n}$  une décroissance continue jusque  $N = 95$ .

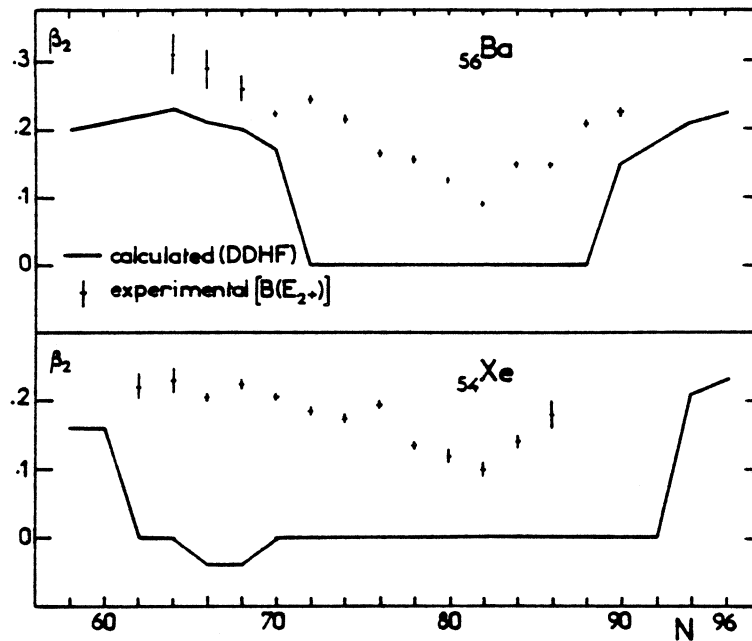


Figure 40 - Variation, avec  $N$ , du paramètre de déformation quadrupolaire  $\beta_2$ , calculé et expérimental, pour les isotopes de Ba et Xe.

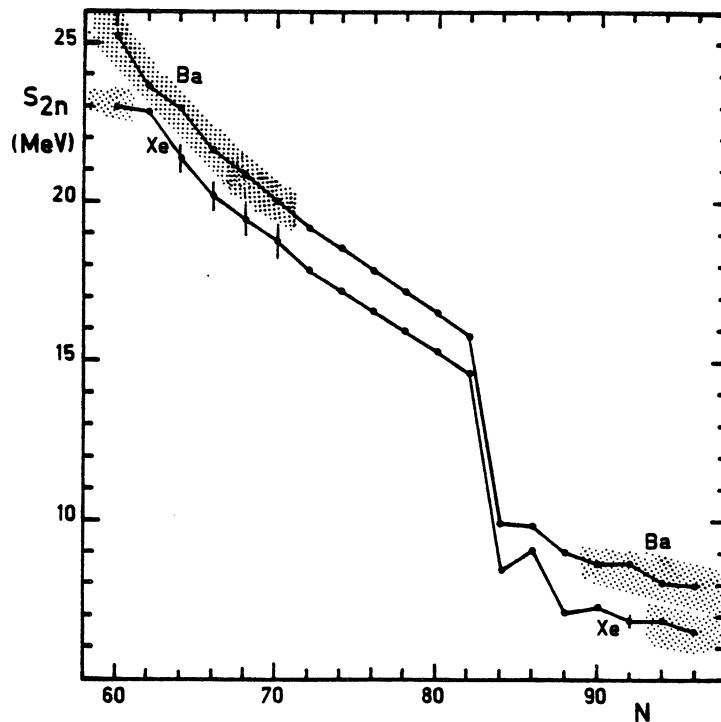


Figure 41 - Energie de Séparation de la dernière paire de neutrons, pour les isotopes de Ba et Xe, d'après notre calcul Hartree-Fock. Le grisé représente les régions où, d'après ce calcul, les noyaux seraient déformés.

### Comparaison avec les Méthodes Fondamentales

Des calculs dans le cadre du modèle des couches avec un oscillateur modifié avaient, dès 1969 [Nil<sub>69</sub>] fait apparaître cette transition de forme sphérique-allongée dans la région des terres-rares. Toutefois ces calculs ne mettent pas clairement en évidence la façon dont évolue cette déformation vers les Z faibles.

Les calculs Hartree-Fock que nous avons appliqués aux isotopes de Xe et Ba indiquent des transitions de forme beaucoup plus tardives pour Xe que pour Ba, tant du côté déficient en neutrons que du côté riche (respectivement  $N = 60$  et  $94$  pour Xe et  $N = 70$  et  $90$  pour Ba). La figure 40 représente pour ces deux éléments l'évolution des paramètres de déformation quadrupolaire neutron  $\beta_2$  calculé et expérimental. Cette dernière quantité est déduite, pour les noyaux pairs-pairs, de la probabilité de transition  $B(E_{2+})$  entre le premier niveau  $2^+$  et le fondamental  $0^+$  [Led 78][Ste 65]. Alors que la valeur calculée ne peut traduire qu'une déformation axiale et statique, la valeur mesurée représente la déformation totale. Il n'est cependant pas évident que les vibrations quadrupolaires puissent expliquer en totalité les écarts entre ces deux courbes.

La différence de comportement entre Ba ( $Z = 56$ ) et Xe ( $Z = 54$ ) en ce qui concerne les déformations axiales statiques issues des calculs H.F. pourrait être due à la proximité de la fermeture de couche proton, à  $Z = 50$ , qui favorise les formes sphériques (voir par exemple figure 38, du côté des N faibles).

Sur la figure 41, nous examinons l'incidence de cette déformation calculée sur les énergies de séparation  $S_{2n}$ . Les grisés indiquent les régions où les déformations sont prévues. Celles-ci ne se manifestent pas nettement aux endroits attendus, (hormis un léger aplatissement des courbes du côté des N forts, masqué par la forte oscillation qui précède et que nous n'expliquons pas). Ceci traduit la faiblesse de l'amplitude de cette déformation ( $\beta_2 \approx 0.2$ , alors que pour les terres-rares  $\beta_2$  atteint 0.35, et 0.38 pour Zr), et est en accord avec les résultats expérimentaux : la transition de forme dans cette région est relativement "douce" et atténuée très modérément l'allure des courbes  $S_{2n}$ .



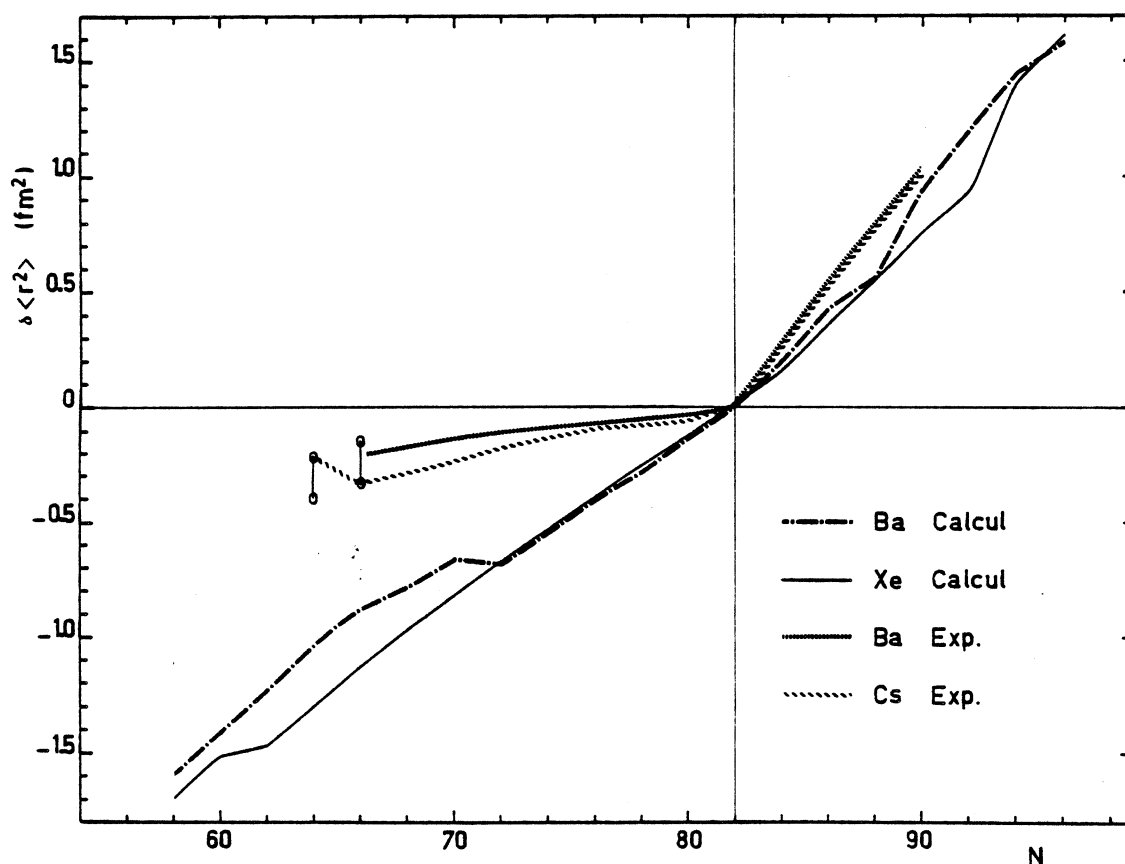


Figure 42 - Variation du rayon carré moyen de charge, normalisé à  $N = 82$ , d'après le calcul, pour Ba et Xe. Les valeurs expérimentales pour Ba [Mül 81] et Cs [Thi 81a] sont également portées sur cette figure ; celles de Xe, d'une extension beaucoup plus réduite, ne sont pas représentées. Les isotopes de Cs ayant 64 et 66 neutrons manifestent un isomérisme de forme, désigné par les cercles ; nous avons joint ceux qui correspondent aux états fondamentaux (voir tableau 19, p.100).

Il serait souhaitable de ce point de vue d'étudier, avec la même force et les mêmes paramètres, comment évolue l'apparition de la déformation au voisinage de  $N = 90$ , tant au point de vue de sa position que de son intensité, pour des  $Z$  pairs s'étendant de 50 jusqu'aux terres-rares.

Du côté des isotopes déficients en neutrons, les variations, dans ces calculs DDHF, du rayon quadratique moyen de charge  $\delta\langle r^2 \rangle$  (figure 42) reflètent mieux les déformations que ne le faisait la variation des  $S_{2n}$ . La courbe expérimentale pour Ba [Mül 81] ne semble pas présenter l'allure suggérée par notre calcul ; en revanche, les résultats expérimentaux de Cs [Thi 81a] mettent en évidence à  $N = 67, 66$  et  $64$  un isomérisme de forme qui s'insère bien entre les points où les transitions de forme sont prévues pour Ba ( $N = 70$ ) et pour Xe ( $N = 60$ ).

#### *b - Rubidium au voisinage de $N = 60$*

Les figures 32a et 33a, mettent nettement en évidence, pour les isotopes de Rb, une remontée importante à  $N = 60$  des courbes  $S_n$  et  $S_{2n}$  expérimentales. L'allure et l'amplitude de cette remontée ressemblent fort à celles des terres-rares, et toute proportion gardée, à celles des isotopes de sodium à  $N = 20$  [Thi 75], suggérant, donc, ici également, une transition brusque de la forme des noyaux.

C'est aussi ce que suggère la systématique des énergies  $E(2^+)$  (figure 36) pour les noyaux voisins où l'on voit un effondrement notable de  $E(2^+)$  à  $N = 60$  [Sak 77], [Wol 77] et [Azu 79] pour  $^{38}\text{Sr}$ ,  $^{40}\text{Zr}$  et  $^{42}\text{Mo}$ . Les rapports  $E(4^+)/E(2^+)$  se rapprochent de 3.33, à partir de  $N = 60$  pour les isotopes de  $^{40}\text{Zr}$  et  $^{42}\text{Mo}$  [Sak 77] et  $^{38}\text{Sr}$  [Azu 79] et [Mat 81], ce qui est caractéristique de noyaux fortement déformés. Les déterminations de  $\beta_2$  pour  $^{100}\text{Zr}$  ( $N = 60$ ) et  $^{102}\text{Zr}$  ( $N = 62$ ) (à partir des  $E_{2^+}$  et des durées de vies) donnent respectivement 0.32 et 0.38 [Jar 74]. D'autres preuves expérimentales sont également en faveur d'une transition de forme : par exemple le nombre important des isomères à longue durée de vie vers  $N = 58, 59$  ([Grü 70], [Cla 74] et [Joh 65]), et le fort abaissement des niveaux  $0_{\text{exc}}^+$  et  $2_{\gamma}^+$  [Kaf 76], qui serait une des signatures d'après Kumar ([Cai 74], p. 112) d'une transition sphérique-déformée. Plus récemment enfin, les mesures des rayons quadratiques moyens de charge et du moment quadrupolaire [Thi 81] des isotopes de Rb montrent, à partir de  $N = 60$ , un très fort accroissement des rayons et

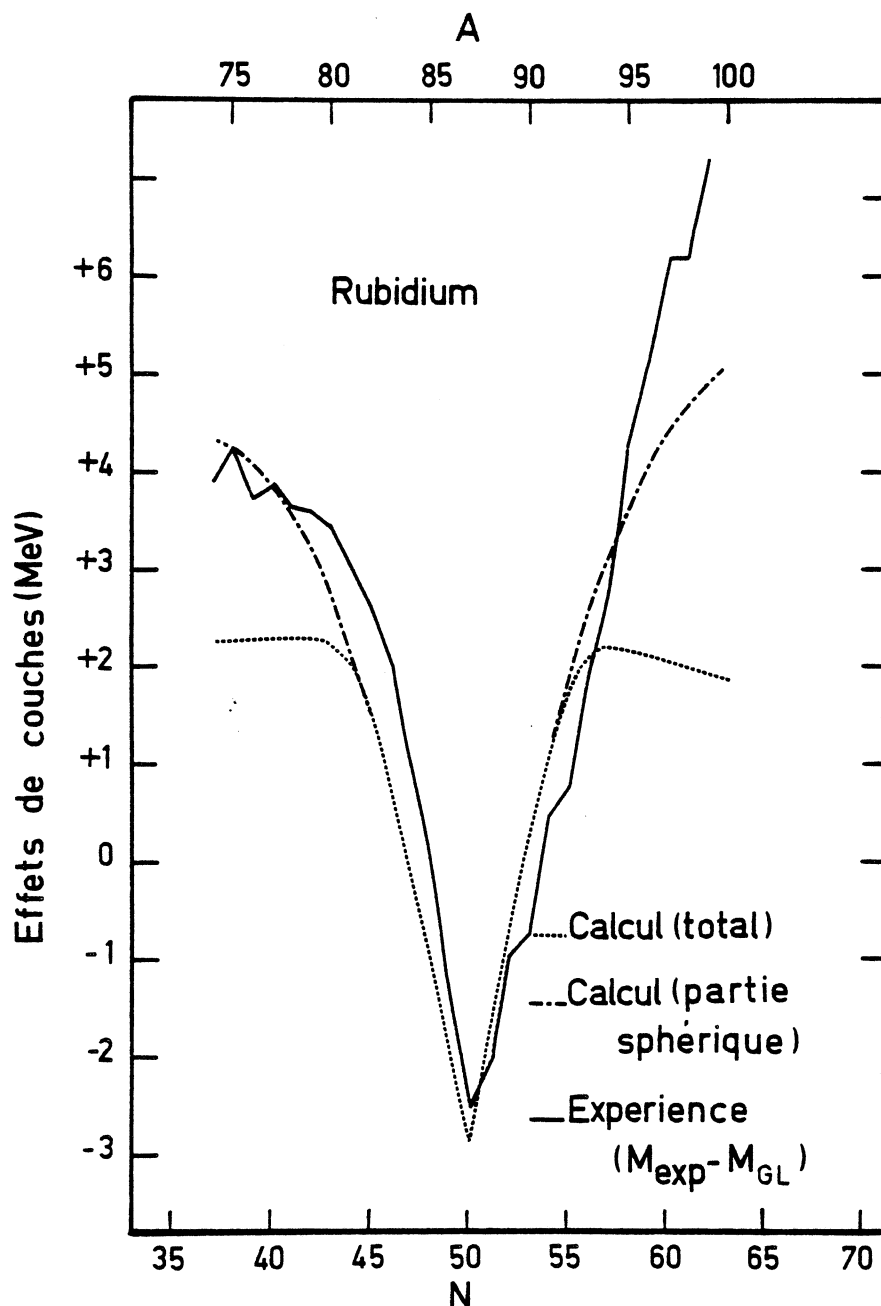


Figure 43 - Comparaison entre la correction de couche du calcul de [Mye 77] et la "correction de couche" expérimentale (masse expérimentale - partie macroscopique de [Mye 77]). Deux courbes théoriques sont représentées : l'une correspond à la composante sphérique seule de la correction de couche (trait mixte), l'autre, à la correction de couche totale, qui inclut donc les déformations (pointillés). Ces deux courbes se séparent en dessous de  $N=43$  et au-delà de  $N=56$ . On peut également remarquer l'oscillation paire-impair de la courbe expérimentale, en dessous de  $N=42$ , et qui s'amplifie à l'approche de  $N=Z=37$ . Au-dessus de  $N=50$  une oscillation paire-impair est également visible.

( GL = goutte liquide )

une valeur de  $\beta \approx 0.33$  confirmant ainsi, pour Rb, la transition brutale de forme à 60 neutrons.

#### Comparaison avec les Prédictions Classiques

Les relations de masses et les formules semi-empiriques classiques semblent bien en peine de prédire cette déformation à  $N = 60$ . Les écarts importants que l'on peut observer, pour les isotopes riches en neutrons, entre les masses expérimentales et les masses estimées (figure 27) (jusqu'à plusieurs MeV) pourraient en partie être dûs à cette déformation.

Ainsi, si l'on considère les formules semi-empiriques basées sur le modèle de la goutte liquide, [Mye 77] par exemple, la figure 43 montre nettement que la correction de couche sphérique, sans déformation, est plus proche de la correction de couche expérimentale que celle avec déformation, sans pour autant résoudre totalement le désaccord. (La correction de couche expérimentale est définie en retranchant le terme macroscopique de goutte de la même formule [Mye 77] à la masse expérimentale). Cette formule prévoit donc des déformations, mais qui apparaîtraient à  $N = 56$  au lieu de  $N = 60$  et qui aplatiraient ainsi beaucoup trop les arches inter-couches. Ceci se reflète sur les courbes  $S_{2n}$  (figure 44), pour cette formule ainsi que pour les autres formules de "goutte" : pour [Mye 66], la déformation apparaîtrait probablement à  $N = 55$  ; pour [Mye 77], à  $N = 56$  ; pour [Gro 76] à  $N = 57$  et pour [See 76] et [Mö1 80] à  $N = 58$ .

La formule semi-empirique basée sur le modèle des couches [Lir 76] ne montre aucune déformation.

Les relations locales du type Garvey-Kelson, enfin, laissent à peine deviner, pour certaines d'entre elles, une rupture de pente : on aurait ainsi une très faible transition de forme pour [Jän 76] à  $N = 60$  pour les isotopes pairs en neutrons et  $N = 63$  pour les impairs (cette distinction serait plus nette sur les courbes  $S_n$ , non représentées ici) ; pour [Com 76] à  $N = 63$  ( $N$  impair seulement) et pour [Jän 76a] à  $N = 60$  ( $N$  pair seulement). La faiblesse de cette rupture, pour ces relations est due au fait que cette transition de forme n'était pas connue au moment où ces calculs ont été effectués (1975).

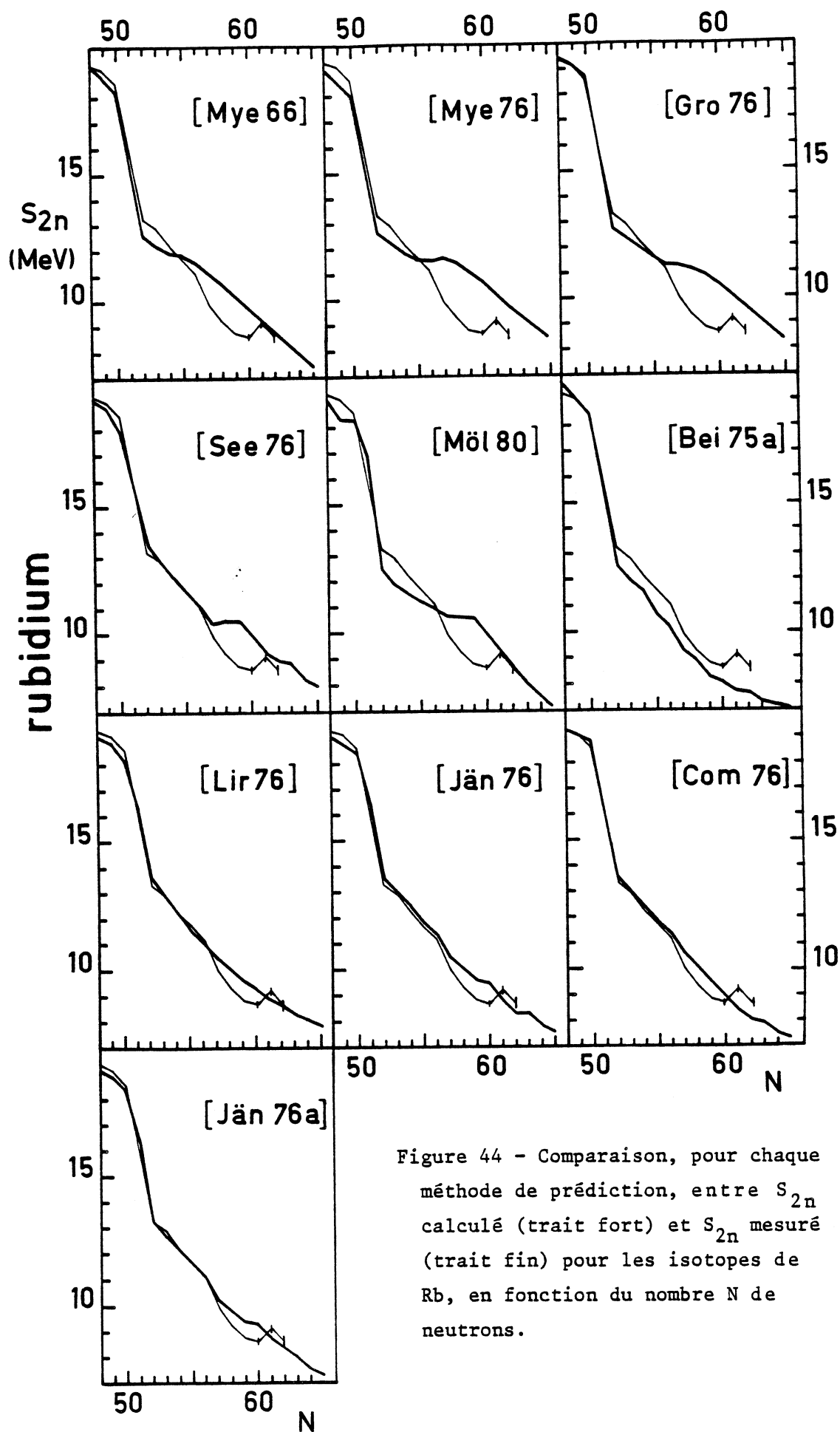


Figure 44 - Comparaison, pour chaque méthode de prédiction, entre  $S_{2n}$  calculé (trait fort) et  $S_{2n}$  mesuré (trait fin) pour les isotopes de Rb, en fonction du nombre  $N$  de neutrons.

### Comparaison avec les Méthodes Fondamentales

Le calcul de Beiner, Lombard et Mas, avec le formalisme de la Densité d'Energie ayant été appliqué à des noyaux sphériques, il est logique que leur courbe  $S_{2n}$  pour Rb (figure 44) soit très régulière (à l'exception d'un léger effet pair-impair dû probablement à la méthode d'évaluation de la masse des isotopes impairs-impairs).

Cette déformation est, par contre, très bien prédite par des calculs du modèle des couches avec un potentiel d'oscillateur modifié (Nilsson-Strutinsky) pour  $^{38}\text{Sr}$  [Azu 79] et [Rag 80a] ; par des calculs du modèle en couches avec une force de Yukawa et des calculs Hartree-Fock-Bogoliubov pour, respectivement,  $^{40}\text{Zr}$  et  $^{42}\text{Mo}$  [Fed 79] ; par des calculs Hartree-Fock avec une force "effective" de Skyrme, appliqués aux noyaux pairs-pairs de  $^{36}\text{Kr}$  et  $^{38}\text{Sr}$  [Cam 80] ; et enfin, tout récemment, par des calculs "self-consistent" utilisant le formalisme de la Densité d'Energie avec déformation pour des noyaux de  $^{38}\text{Sr}$  et  $^{40}\text{Kr}$  [Ton 81].

### 3) Autres "Anomalies"

L'étude que nous venons de faire, partait de l'idée d'un comportement très régulier des fonctions  $S_n$  et  $S_{2n}$  avec  $N$ , continûment décroissantes, à l'exception d'"accidents" qui ont pu être mis en rapport avec des effets de couches ou des déformations.

Cette grande régularité partout ailleurs, nous amène à nous interroger sur toute autre "anomalie" qui pourrait être imputée soit à un phénomène physique soit à une erreur de mesure.

Nous rencontrons, dans nos résultats, deux telles anomalies : l'une dans la région des isotopes de Rb très déficients en neutrons ; l'autre au voisinage de  $^{224}\text{Fr}$ .

#### *a - Rubidium au Voisinage de $N = Z = 37$*

La pente de la courbe  $S_n$ , pour  $N$  impair (figure 32a), subit, en valeur absolue un accroissement très important lorsque  $N$  décroît de 43 à 37.

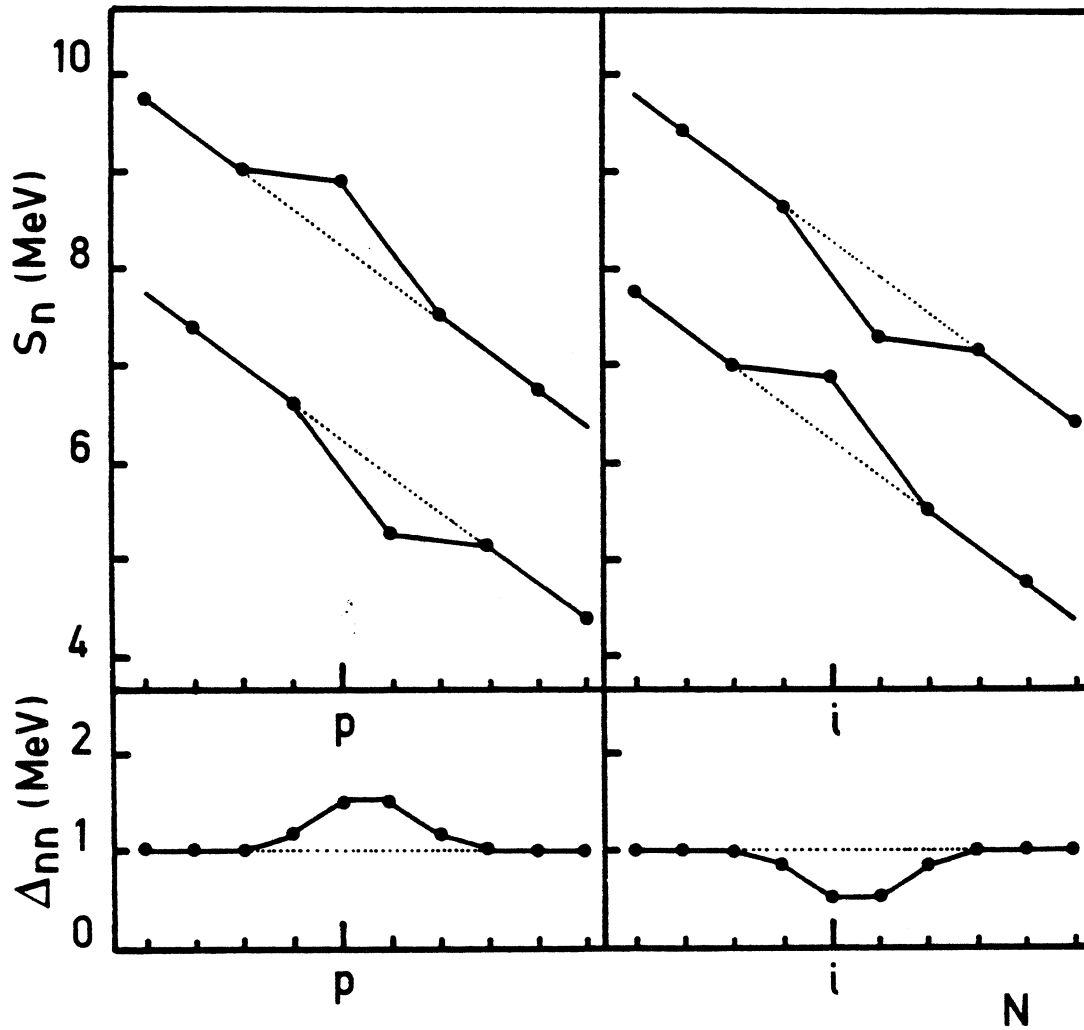


Figure 45 - Représentation schématique de l'influence sur les énergies de séparation (en haut) et d'appariement (en bas), d'un excédent d'énergie de liaison pour un seul isotope (à gauche, s'il est pair en neutrons ; à droite, s'il est impair) par rapport au comportement régulier des noyaux voisins.

La courbe à N pair, semble, quant à elle, garder, dans la limite des barres d'erreur, une pente régulière, de l'ordre de celle qu'on peut observer tout de suite après la fermeture de la couche à  $N = 50$ .

Nous réexaminerons ce comportement particulier plus loin et tenterons de l'interpréter, d'une part, par son incidence sur les énergies d'appariement (§ suivant) et, d'autre part, dans le cadre du modèle de la goutte liquide (cf. E-II;2).

#### *b - Francium au Voisinage de $A = 224$*

L'irrégularité qui apparaît sur les figures 32c et 33c au niveau de  $^{224}\text{Fr}$ , et uniquement pour le francium, indique que, selon nos mesures de masses,  $^{224}\text{Fr}$  serait plus lié d'environ 300 keV que ne le suggère une interpolation à partir des noyaux voisins. En effet, une diminution de l'énergie de liaison de  $^{224}\text{Fr}$  (et de lui seul) de 300 keV, résorberait totalement cette anomalie (figure 45).

Etant donné, par ailleurs, la réserve que nous avons émise lors de la présentation des résultats (cf. § C-VI ; p. 112), nous sommes amenés à penser que notre mesure de la masse de ce  $^{224}\text{Fr}$  est entâchée d'une erreur dont nous ignorons l'origine (voir la discussion par ailleurs).

## II - ENERGIES D'APPARIEMENT

### 1) Informations Expérimentales

Nous avons noté sur les courbes  $S_n$  (figures 32 a,b et c) que les distances entre lignes paires et impaires étaient dues à l'interaction d'appariement.

En suivant un raisonnement analogue à celui de Zeldes [Zel 65] et [Zel 67], nous pouvons expliciter la relation entre ces distances et les énergies d'appariement des deux derniers nucléons :  $\Delta_{nn}$ , neutron-neutron ;



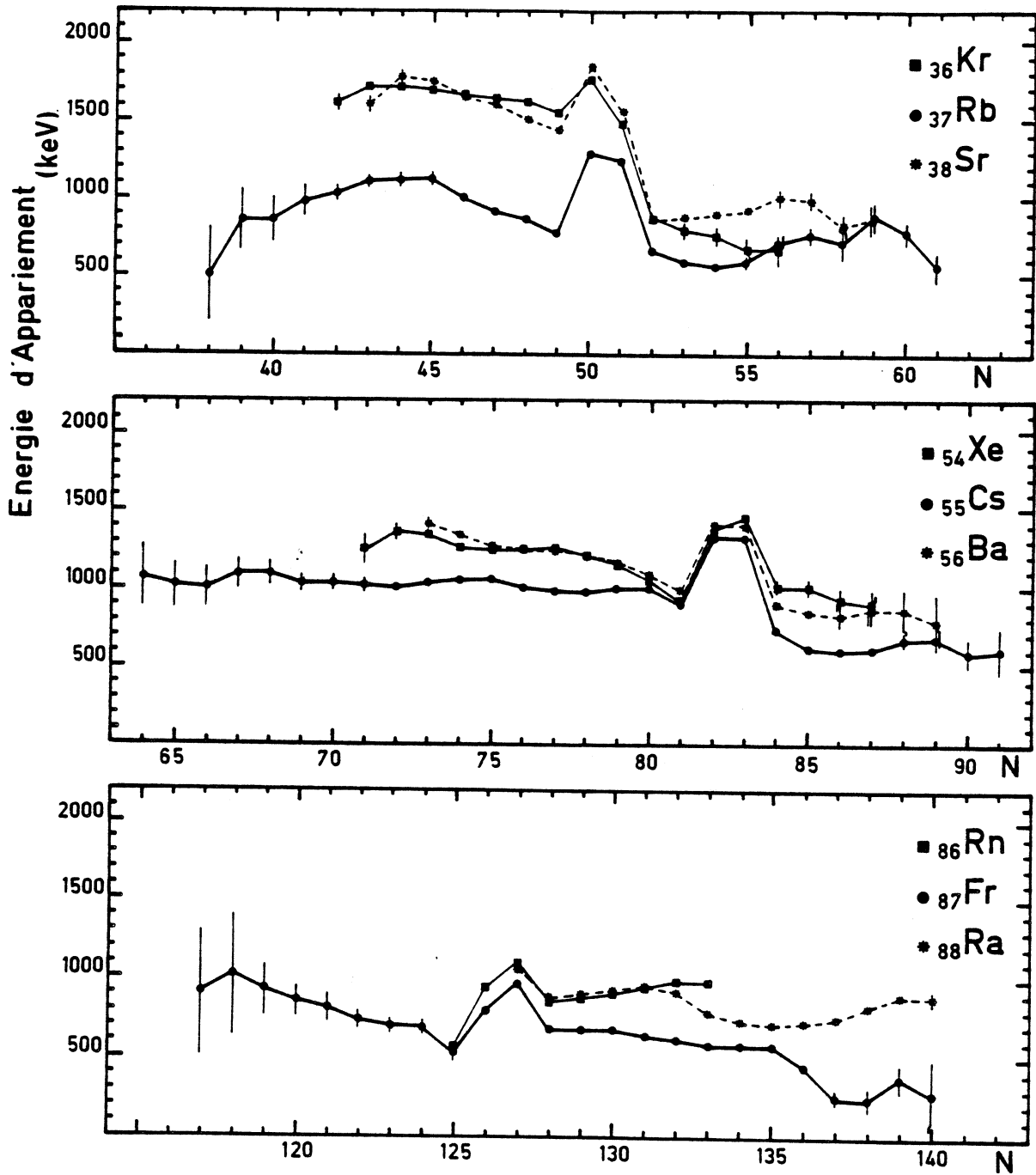


Figure 46 - Energies d'appariement ( $\Delta_{nn} - \Delta_{np}$ ) des éléments Rb, Cs et Fr (Z impair) et ( $\Delta_{nn}$ ) de leurs voisins immédiats (Z pair).

$\Delta_{pp}$ , proton-proton ; et  $\Delta_{np}$ , neutron-proton :

$$\Delta_{nn}(N,Z) - \left( \frac{1-(-1)^Z}{2} \right) \Delta_{np}(N,Z) = \frac{(-1)^{N+1}}{4} [S_n(N+1,Z) - 2S_n(N,Z) + S_n(N-1,Z)] \quad (E.5)$$

Cette distance vaut donc  $2\Delta_{nn}$  pour les Z pairs et  $2(\Delta_{nn} - \Delta_{np})$  pour les Z impairs.

Les quantités exprimées par l'équation (E.5) sont portées sur la figure 46 pour les éléments Rb, Cs et Fr, ainsi que pour leurs voisins immédiats (de Z pair), en fonction de N.

Sur ces courbes, les fermetures de couches et les apparitions brutales, avec N, de déformations se manifestent par des formes en trapèze. L'ordonnée des courbes de Z pair renseigne sur l'appariement n-n ; et la distance entre courbes paires et impaires, sur l'appariement n-p.

De l'étude de ces énergies d'appariement (figure 46) il ressort que celles-ci sont sensiblement plus faibles après les fermetures de couches à  $N = 50$  et  $N = 82$  qu'avant ces fermetures. Cet effet est très peu sensible à  $N = 126$ . Nous avons vérifié que ce comportement par rapport à ces trois nombres magiques était suivi par toutes les autres masses connues [Wap 77].

Un autre fait qui apparaît nettement sur ces figures est que l'interaction neutron-proton  $\Delta_{np}$  n'est pas négligeable, même pour les noyaux lourds (figure 46c) où elle a une valeur comprise entre 200 et 300 keV. Pour les noyaux de masse moyenne (Rb par exemple), elle atteint facilement 700 à 900 keV. Nous constatons que, pour cette interaction n-p un effet de couche est pareillement visible à  $N = 50$  :  $\Delta_{np}$  est plus important avant la fermeture, lorsque les derniers neutrons et protons sont dans la même couche, qu'après cette fermeture. Cette interaction n-p n'est cependant pas prise en compte par plusieurs formules de masses récentes ([Gro 76], [See 76], [Bau 76]...).

Sur la figure 46a on peut noter que la quantité  $(\Delta_{nn} - \Delta_{np})$  pour les isotopes très déficients en neutrons de Rb décroît lentement en-dessous de  $N = 45$ , où elle vaut 1100 keV, puis s'écroule rapidement jusque 500 keV à

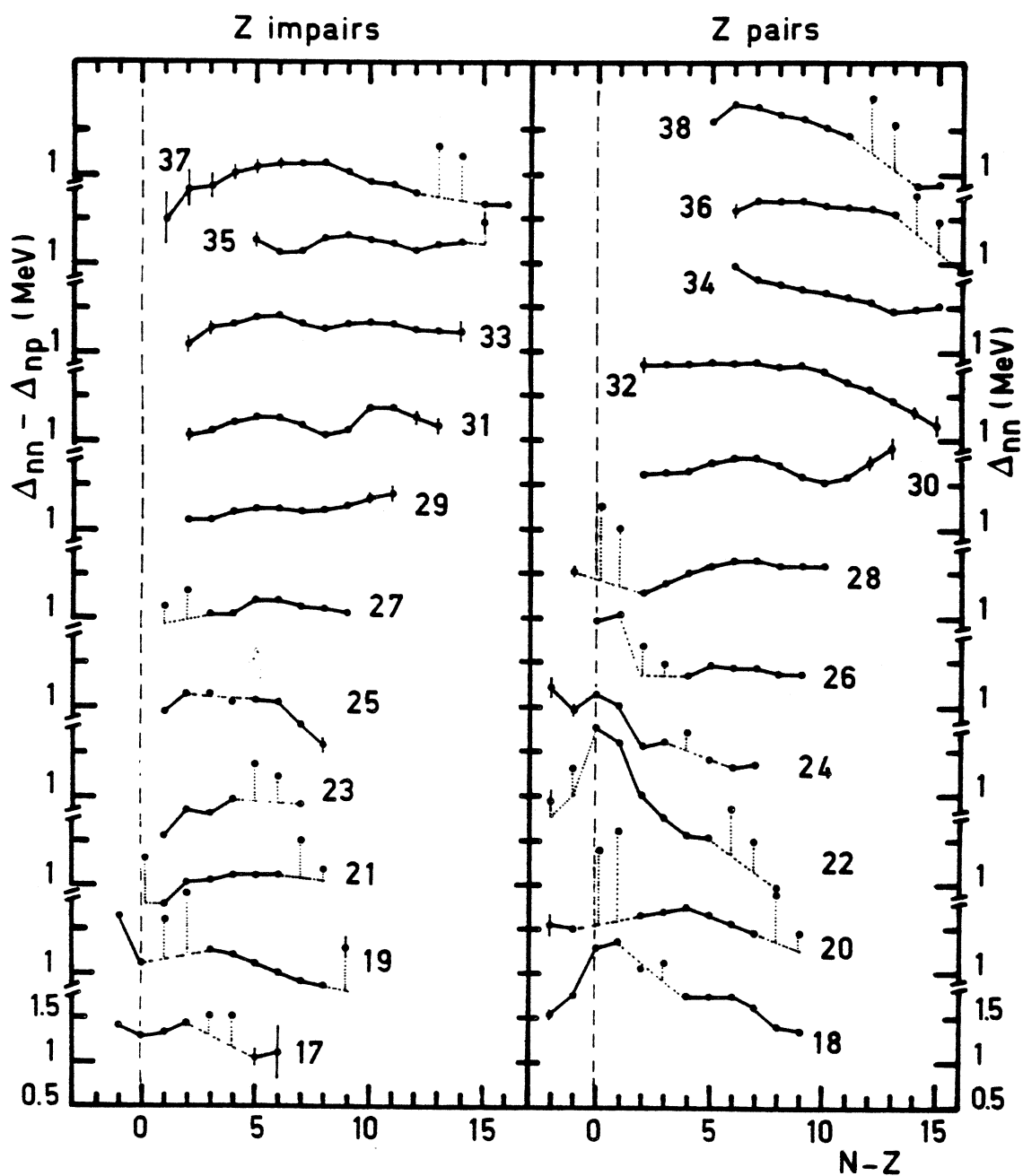


Figure 47 - Energies d'appariement portées en fonction de l'excès de neutrons  $N - Z$  pour les éléments de  $Z$  compris entre 17 et 38. A gauche,  $Z$  impair; à droite,  $Z$  pair. Les points correspondants aux nombres magiques  $Z = 20, 28$  et  $50$  et à leurs voisins supérieurs (21, 29 et 51) sont joints aux courbes par des pointillés, afin de concentrer l'attention sur l'effet  $N = Z$ .

$N = 38$ . Cet effondrement est visiblement relié à la forte courbure de la courbe  $S_n$  pour  $N$  impair, que nous avons observée plus haut (voir figure 32a).

Etant donné que ce comportement se manifeste à l'approche de  $N = Z$ , nous avons examiné sur la figure 47, le comportement des énergies d'appariement des éléments de  $Z$  moins élevé. (Pour ceux de  $Z$  plus élevé, on s'écarte fortement de l'égalité neutron-proton). Les premiers éléments rencontrés, de  $Z$  impair, qui approchent  $N = Z$  d'aussi près que le  $_{37}\text{Rb}$  sont  $_{25}\text{Mn}$  et  $_{23}\text{V}$ : ils exhibent le comportement décrit ci-dessus. Les éléments  $_{27}\text{Co}$ ,  $_{21}\text{Sc}$  et  $_{19}\text{K}$  ne permettent pas une bonne observation, vu les effets de couches (pour  $N = 28$  et  $20$ ) au voisinage de  $N = Z$ . Pour  $_{17}\text{Cl}$  une faible structure en trapèze renversé est visible. Les éléments de  $Z$  pair sont également examinés sur la figure 47: ils tendent à reproduire à  $N = Z$ , la même structure en trapèze, mais cette fois-ci non renversé, par exemple pour  $_{24}\text{Cr}$  et  $_{18}\text{Ar}$ .

Ces structures pourraient être dues, toutes deux, à un excès d'énergie de liaison de l'isotope  $N=Z$ , par rapport à ce qu'indique le comportement des noyaux voisins. En effet, un accroissement de l'énergie de liaison de l'isotope  $N=Z$  d'une quantité  $E$  se traduit pour  $Z$  pair (impair) par l'augmentation (la diminution) de l'énergie d'appariement des isotopes  $N$  et  $N+1$  de  $0.75E$  et des isotopes  $N-1$  et  $N+2$  de  $0.25E$ . (figure 45).

La chute observée à  $N=Z$  pour le rubidium est vraisemblablement l'amorce d'une telle structure en trapèze (renversé pour  $Z$  impair) qui traduit ainsi un excès d'énergie de liaison de l'isotope  $^{74}\text{Rb}$  ( $N = Z = 37$ ).

*Remarque : Nous pouvons observer le même phénomène (figure 46c) pour  $^{224}\text{Fr}$ . Le trapèze inversé pour cet isotope ( $N$  impair) traduit son excès d'énergie de liaison par rapport aux noyaux voisins (cf. E-I-3b : "Anomalie du  $^{224}\text{Fr}$ " ; p. 165).*

*Une étude systématique des énergies d'appariement peut donc permettre, à l'instar des énergies de séparation  $S_{2n}$  de détecter des comportements anormaux, ou de permettre de mieux évaluer par interpolations ou courtes extrapolations, certaines masses inconnues [Wap 77].*

## 2 - Comparaison avec les Modèles

Nous nous proposons de comparer systématiquement ici, mais dans un seul cas, celui des isotopes de rubidium (parce qu'il offre un intérêt particulier : celui de l'étude des noyaux au voisinage de  $N=Z$ ), les énergies d'appariement expérimen-

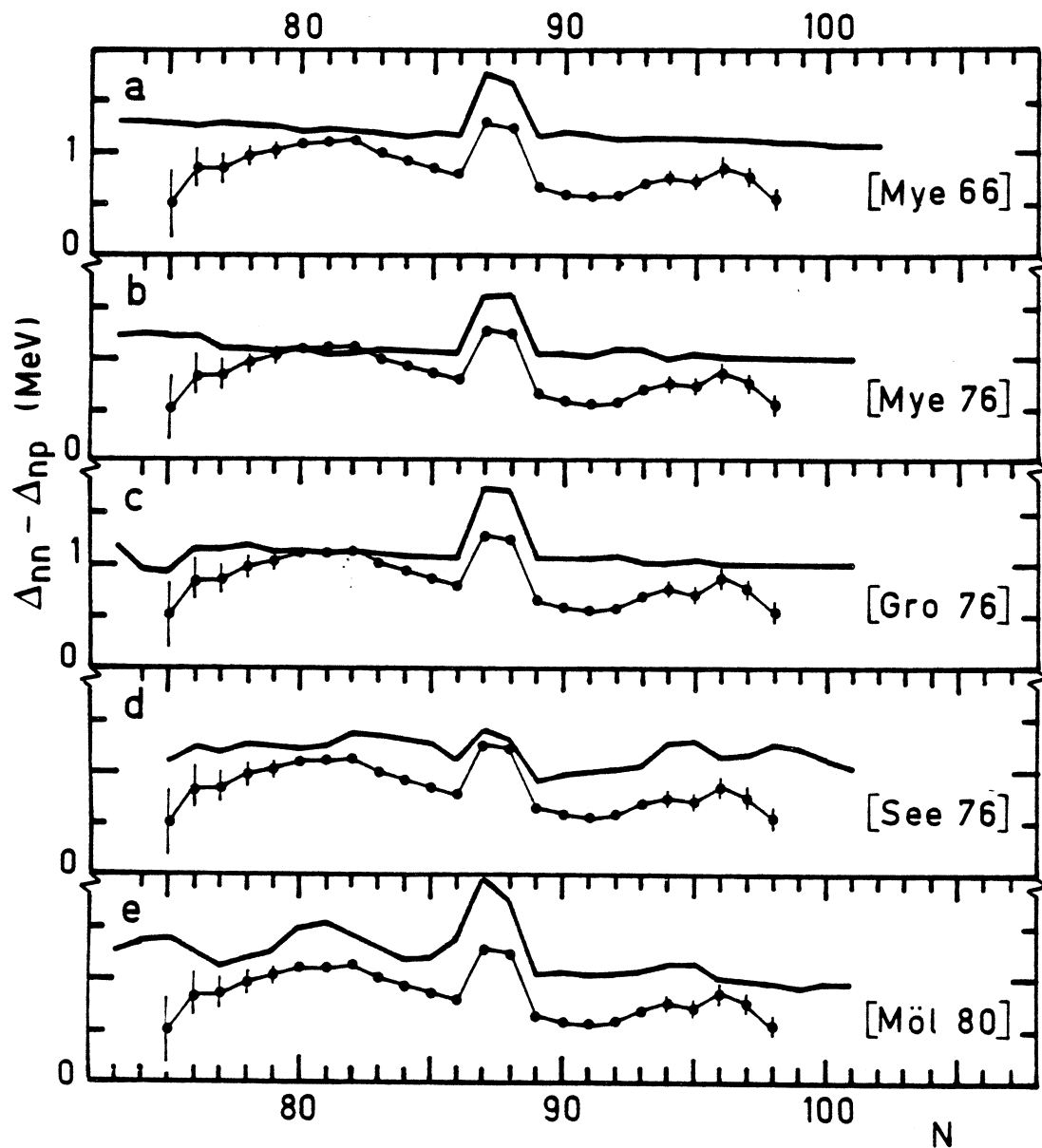


Figure 48 - Comparaison, pour les isotopes de Rb, entre les énergies d'appariement ( $\Delta_{nn} - \Delta_{np}$ ) expérimentales (points joints par un trait fin) et celles déduites des estimations de masses des formules semi-empiriques basées sur le modèle de la goutte liquide (trait épais).

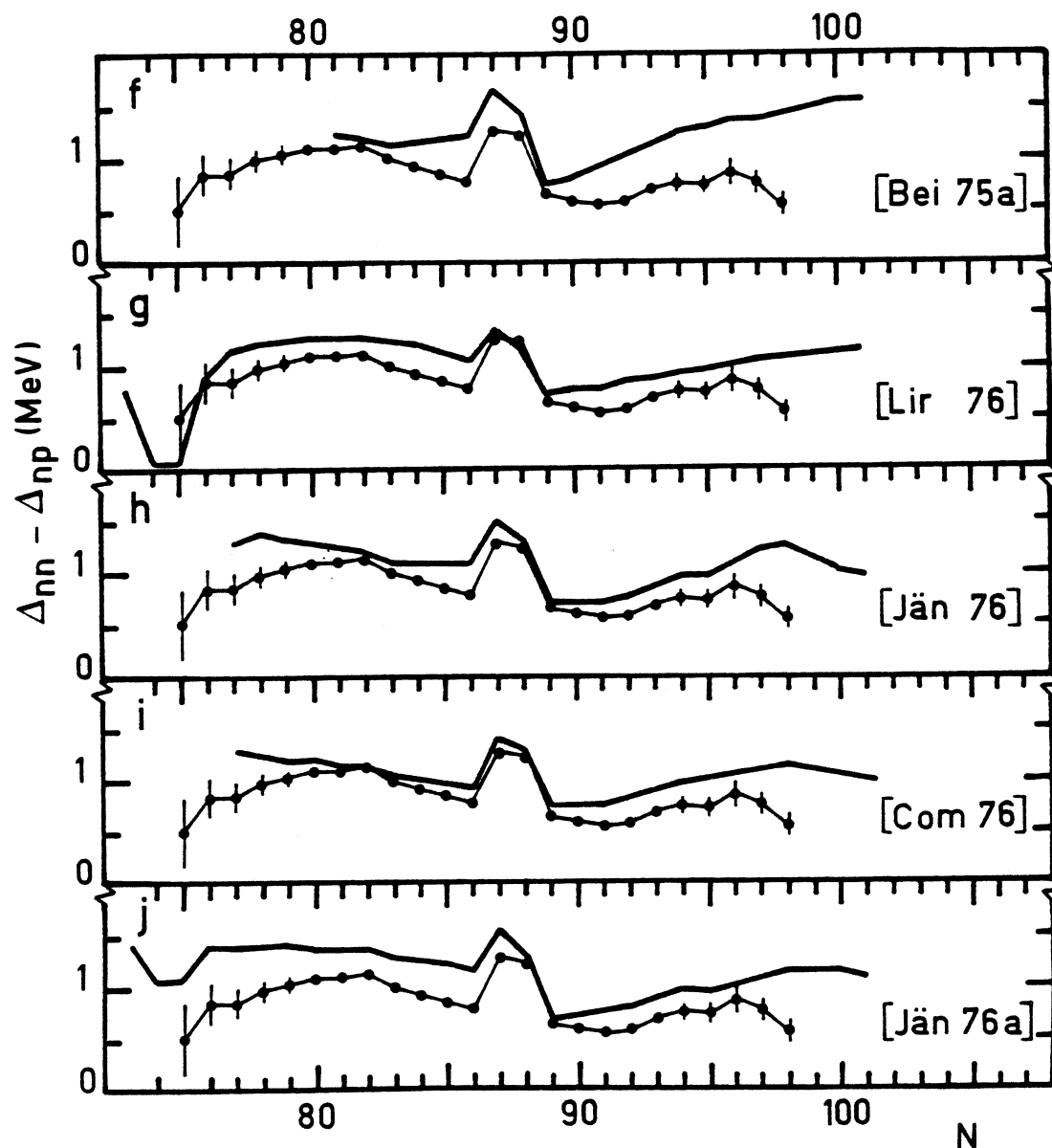


Figure 48 (suite) - Même comparaison pour le calcul de Beiner avec le formalisme de la Densité d'Energie, pour la formule semi-empirique du "Modèle des Couches" de Liran et Zeldes et les relations locales du type Garvey-Kelson.

tales avec celles que nous pouvons déduire des masses estimées par les différentes formules et relations de masses. Nous interpréterons ensuite, dans le cadre du modèle de la *goutte liquide*, l'effondrement qui vient d'être observé, pour les isotopes les plus déficients en neutrons de Rb, comme étant dû au terme dit "de Wigner".

Appliquons aux résultats des calculs, l'équation (E.5), pour évaluer, *a posteriori*, les énergies d'appariement que les formules ou relations de masses ont prises en compte. La figure 48 met en évidence les différences entre énergies calculées et mesurées.

De l'examen global de cette figure, ressort un défaut commun à toutes les prédictions traitées ici, et qui est une surestimation de l'énergie d'appariement ( $\Delta_{nn} - \Delta_{np}$ ), probablement due dans la majorité des cas à la non prise en considération de l'appariement neutron-proton  $\Delta_{np}$ .

#### a - Effet de Couche sur l'Energie d'Appariement

L'affaiblissement des énergies d'appariement après la fermeture de couche, mis en évidence à partir des résultats expérimentaux, est diversement reproduit.

Les formules de goutte liquide l'ignorent, à l'exception de celle de Seeger. Ce dernier [See 76] évalue l'énergie d'appariement par un calcul BCS des états fondamentaux, alors que les autres considèrent pour cette énergie :

- i) [Mye 66] et [Gro 76] un terme simple à 1 paramètre ( $-\Delta, 0, +\Delta$  respectivement pour les noyaux pairs-pairs, A-impairs et impairs-impairs, avec  $\Delta = k A^{-1/2}$ ) qui néglige ainsi les interactions résiduelles n-p! et qui ne tient pas compte des effets de couches ;
- ii) [Mye 76] et [Tak 76] un terme à 2 paramètres ( $-\Delta + 1/2\delta$ ,  $1/2\delta$ ,  $\Delta - 1/2\delta$ ) qui prend en considération une interaction n-p de  $\delta = 20/A$  MeV, mais ignore, à nouveau, les effets de couches.

La formule de Möller et Nix [Möl 80] présente de fortes oscillations qui ne peuvent être interprétées de façon simple et qui ne permettent pas de conclure nettement si, ici, l'énergie d'appariement est plus faible ou non après la fermeture de couche. Ces auteurs utilisent un terme d'appariement identique à celui de [Mye 76].

L'effet de couche sur l'appariement est par contre très bien reproduit

par les relations locales [Jän 76], [Com 76] et [Jän 76a] ainsi que par la formule semi-empirique de Liran et Zeldes, basée sur le modèle des couches [Lir 76].

Les calculs "self-consistent" utilisant le formalisme de la Densité d'Energie [Bei 75a] font également apparaître l'effet attendu, mais seulement au voisinage immédiat de la fermeture de couche.

*Remarque : Cet effet de couche sur l'énergie d'appariement a été vu pour la première fois par Suess et Jensen en 1951 [Sue 51] par l'étude des systématiques des énergies de désintégration  $\beta$  des noyaux impairs et a été interprété comme étant dû aux variations du spin des derniers niveaux occupés aux fermetures de couches principales.*

#### b - Voisinage de $N = Z$

Il est intéressant de noter que la structure en trapèze renversé dont nous venons de faire état et qui nous a paru être due à un excès d'énergie de liaison de  $^{74}\text{Rb}$  ( $N = Z = 37$ ), est reproduite, à la position exacte attendue (figure 48), par trois estimations basées sur des méthodes différentes : une formule de "goutte liquide" [Gro 76], une relation de masse [Jän 76a] et la formule semi-empirique basée sur le modèle des couches [Lir 76]. Cette dernière semble cependant amplifier le phénomène.

La formule de Seeger [See 76] donne une allure plus modulée que les autres formules de "goutte liquide" (figure 48d) et suit d'assez près la courbe expérimentale. Cependant, elle n'étend pas ses prédictions suffisamment loin de la stabilité.

Deux formules n'exhibent aucune structure particulière à  $N=74$  et  $75$  (hormis celle de [Möl 80] du fait, toujours, de ses oscillations) : celles de [Mye 66] et de [Mye 77], toutes deux issues du modèle de la goutte liquide. Autant ce résultat paraît normal pour la première formule, autant il exige quelques commentaires pour la seconde.

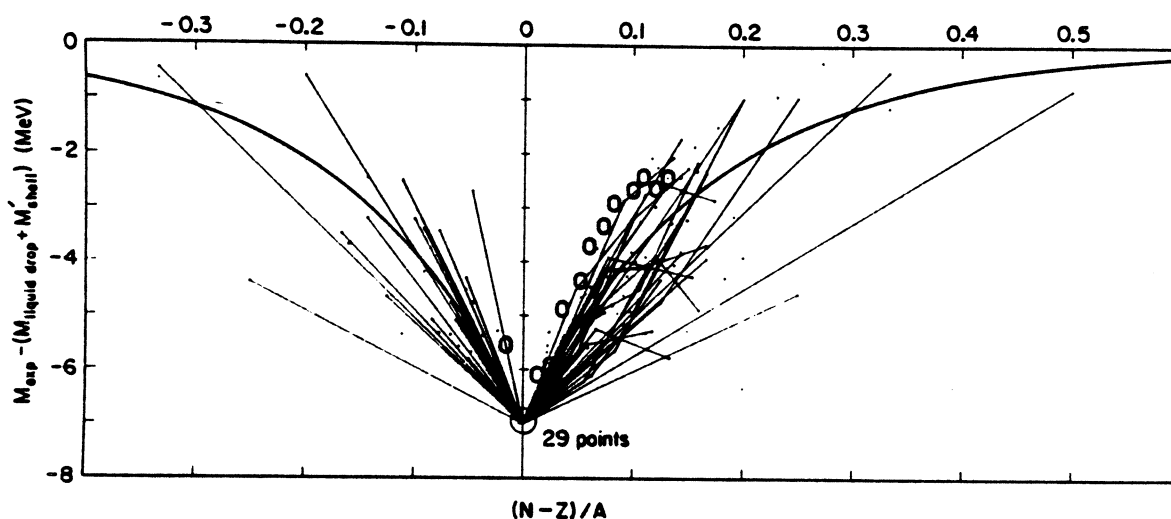
#### Formules de Goutte Liquide

Dans le cas des formules semi-empiriques basées sur le modèle de la goutte liquide, les différents comportements que nous venons d'observer peuvent être interprétés assez simplement. En effet, dans ces formules le seul terme qui agisse ponctuellement à  $N = Z$  est le terme dit de "Wigner", terme qui reflète l'augmentation d'énergie due à la symétrie entre  $N$  et  $Z$  :

$$W(N, Z) = W \cdot |I|$$

avec 
$$I = \frac{N - Z}{A}$$
 (E.6)





The sharp trough along  $N = Z$ , occurring in the masses of the lighter nuclei, is illustrated. The experimental masses in the range  $A = 4$  to  $A = 58$  were corrected for all known effects (liquid-drop binding and shell effects deduced from nuclei with  $N = Z$ ) and the remainder plotted as a function of  $(N - Z)/A$ . Lines connect even- $A$  isobars, dots correspond to odd values of  $A$ . The smooth curve is the exponential function  $-7 \exp(-6|N-Z|/A)$ .

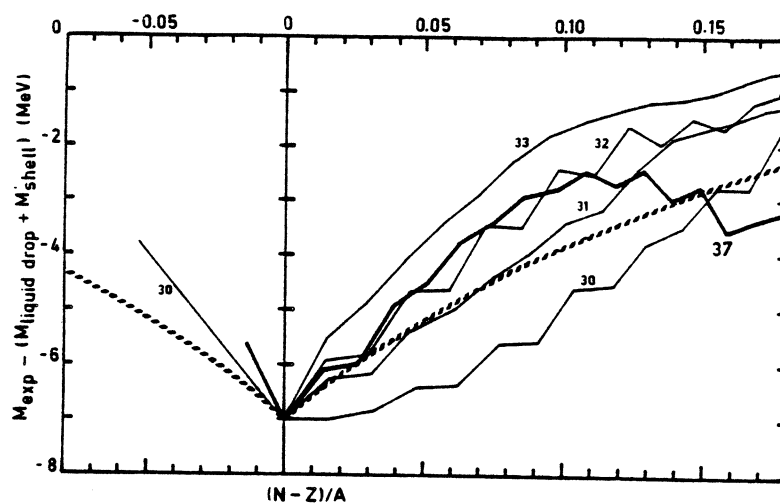


Figure 49 - En haut: mise en évidence [Mye 66] du terme de "Wigner". Nos résultats pour Rb sont reportés sur cette figure (cercles clairs).  
En bas: figure analogue à la précédente pour les éléments de  $Z$  plus élevé qui atteignent l'égalité neutron-proton:  $^{30}\text{Zn}$ ,  $^{31}\text{Ga}$ ,  $^{32}\text{Ge}$ ,  $^{33}\text{As}$  et  $^{37}\text{Rb}$ . Les conventions sont les mêmes que celles de [Mye 66], mais nous joignons les isotopes et non plus les isobares. La fonction exponentielle est reproduite ici en pointillés.

L'ancienne formule de Myers et Swiatecki [Mye 66] qui ne comportait pas ce terme, a permis à ses auteurs de le mettre en évidence, à la suite de l'observation d'écarts systématiques des résultats de leurs calculs par rapport aux masses expérimentales, au voisinage de  $N = Z$ . C'est pour cette raison que, sur la figure 27a, au chapitre précédent, les masses calculées par cette formule divergeaient, jusqu'à 4 MeV pour  $^{74}\text{Rb}$ , des résultats expérimentaux. C'est pour cette raison également que sur la figure 48a, aucune structure particulière n'apparaît au voisinage de  $N = Z$ .

Nous avons prolongé, pour les éléments  $_{30}\text{Zn}$ ,  $_{31}\text{Ga}$ ,  $_{32}\text{Ge}$  et  $_{33}\text{As}$  (à l'aide des dernières données expérimentales [Wap 81]), ainsi que pour  $_{37}\text{Rb}$ , l'étude qu'ils avaient menée pour des noyaux légers (jusque  $A = 58$ ). La figure 49 reproduit dans sa partie supérieure, celle qu'ils avaient publiée et sur laquelle nous avons reporté nos valeurs pour Rb jusque  $N = 48$  ( $N - Z = 11$ ). Dans la partie inférieure, nous portons avec les mêmes conventions, mais en joignant les isotopes et non plus les isobares (et en élargissant l'échelle des abscisses), les courbes pour  $Z = 30, 31, 32, 33$  et  $37$ . Ces courbes sont compatibles avec l'exponentielle suggérée par Myers et Swiatecki :

$$- 7 e^{-6 |I|} \quad (\text{MeV})$$

mais compatible également avec une droite du type (E.6), non représentée ici, avec  $W = 30$  ou  $35$  MeV.

La plupart des autres formules de "goutte liquide" [Gro 76] (ou [Tak 76] ) et [See 76] utilisent l'expression linéaire (E.6). La première exhibe ainsi nettement (figure 48c) pour  $\Delta_{nn} - \Delta_{np}$  une structure en trapèze . La dernière, qui s'arrête trop tôt ( $N = 36$ ), amorce seulement une telle structure (comme pour la courbe expérimentale). L'amélioration apportée aux prédictions de ces formules, au voisinage de  $N = Z$ , par l'introduction du terme de "Wigner" est illustrée sur la figure 50. Nous y portons, en fonction de  $N - Z$ , l'écart entre masses calculées et masses mesurées pour les éléments de  $Z = 30$  à  $37$ , d'une part pour la formule [Mye 66] et d'autre part pour [See 76]. La "pointe" très importante de la première à  $N = Z$  (masses prédites trop peu liées) s'évanouit totalement pour la seconde, et pour tous les éléments considérés, grâce au terme de "Wigner" (E.6) avec  $W = 35$  MeV.

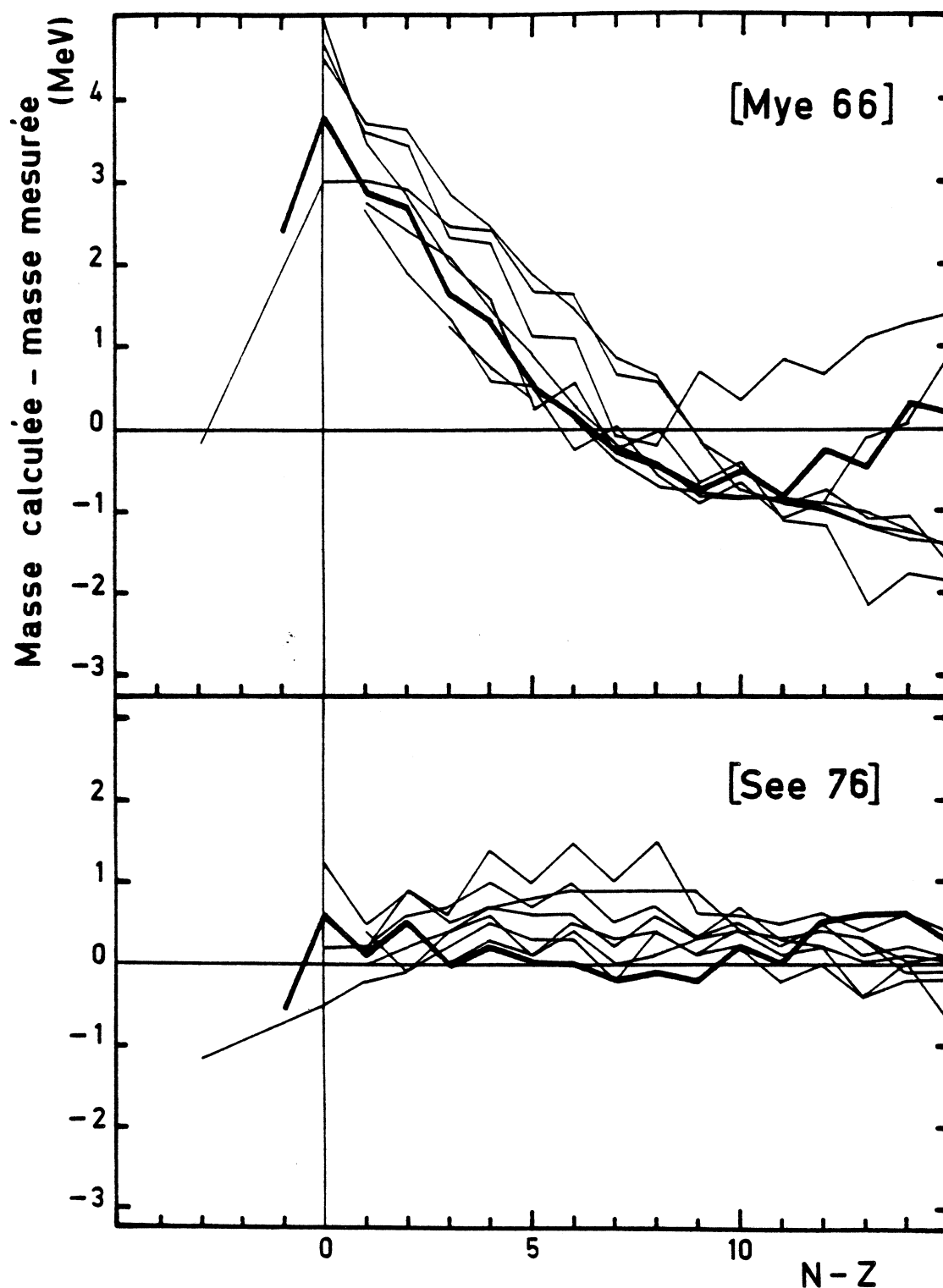


Figure 50 - Différences entre masses calculées et masses mesurées, pour les isotopes de  $Z = 30$  à  $36$  (traits fins) et  ${}_{37}\text{Rb}$  (trait fort), en fonction de l'excès de neutrons  $N - Z$ . La présentation est analogue à celle de la figure 27 (page 129). En haut, comparaison avec la formule de Myers et Swiatecki [Mye 66] sans terme de "Wigner"; en bas, comparaison avec la formule de Seeger et Howard [See 76] avec un terme de "Wigner" linéaire.

Dans sa dernière formule, Myers ( [Mye 76] et [Mye 77]) introduit un terme supplémentaire  $\delta$  dans (E.6) à la suite de considérations théoriques sur l'interaction entre nucléons dans des orbites identiques :

$$W(N, Z) = W(|I| + \delta) \quad (E.7)$$
$$\text{avec } \begin{cases} \delta = \frac{1}{A} & \text{pour } N = Z = \text{impair} \\ \delta = 0 & \text{dans les autres cas} \end{cases}$$

Il en résulte une atténuation de l'effet du terme de "Wigner", puisque  $W(N, Z)$  est le même pour  $N = Z-1$ ,  $Z$  et  $Z+1$ . On obtient alors une structure en trapèze affaiblie et inversée, comme on peut le voir sur la figure 48b.

Nos résultats expérimentaux (figure 46) et les autres résultats récents [Wap 81] (figure 47) confirment donc pour des noyaux plus lourds (jusque  $Z = 37$ ) l'étude de Myers et Swiatecki de 1966 sur l'existence d'un terme de Wigner (de forme exponentielle, ou bien encore linéaire comme dans les formules récentes), mais ne sont pas en faveur de l'addition d'un  $\delta$  (E.7) malgré la justification théorique de celui-ci, à moins de l'atténuer fortement.

o o  
o



## C O N C L U S I O N

Nous avons montré dans ce travail, qu'un spectromètre de masse de haute résolution avec une transmission optimisée, installé auprès d'un séparateur d'isotopes radioactifs, permet de mesurer avec une bonne précision (mieux que 100 keV) les masses des noyaux (même de A élevé) de longues séries isotopiques.

Les résultats obtenus pour les éléments rubidium ( $Z = 37$ ), césium ( $Z = 55$ ) et francium ( $Z = 87$ ), permettent de dégager quelques propriétés physiques des noyaux atomiques. Nous avons pu par exemple :

- i) déterminer l'excès d'énergie de liaison des noyaux  $N \neq Z$ , pour un élément de  $Z$  aussi élevé que le Rb (apportant ainsi des précisions sur le terme dit "de Wigner" du modèle de la goutte liquide) ;
- ii) décrire, directement à partir de nos résultats et des masses expérimentales des éléments voisins, quelques variations significatives des énergies d'appariement  $n-n$  et  $n-p$  ;

- iii) montrer un effet de sous-couche à  $N = 56$  pour le Rb et évaluer la "force" relative de cette fermeture par rapport à celle de la couche principale à  $N = 50$  ;
- iv) mettre en évidence, le long de deux chaînes isotopiques, des transitions de forme des noyaux : celle du césium à  $N = 91$ , qui prolonge ainsi, à  $Z = 55$ , la déformation bien connue des terres-rares à  $N = 90$  ( $Z = 59$  à  $66$ ) ; et celle du rubidium à  $N = 60$ . Cette dernière transition a été confirmée depuis par d'autres résultats expérimentaux ( $\delta < r^2 >$  ;  $E(2^+)$  des isotopes de Sr).

Ce travail ouvre ainsi des perspectives. Nous envisageons, dans un avenir immédiat, d'étendre à d'autres éléments de telles mesures de masses. La mise au point d'un Synchomètre à Radio-Fréquence devrait permettre, par la suite, de poursuivre le même but (propriétés physiques des noyaux et métrologie) avec une précision accrue et d'obtenir une plus grande acceptance des noyaux produits par un séparateur.

Cette extension des mesures de masses de précision élevée à d'autres éléments ne manquera sans doute pas d'enrichir, comme l'a montré ce travail, nos connaissances sur la structure nucléaire.

o o  
o

## A P P E N D I C E S

1. DEFINITIONS RELATIVES AUX MASSES
2. OPTIQUE MATRICIELLE
3. CALCULS D'INCERTITUDE
  - A. Centre de gravité d'un pic ("MEAN")  
et écart-type
  - B. Incertitude expérimentale sur la masse
4. CALIBRATION DE LA MODULATION DE BALAYAGE
5. METHODE DES MOINDRES CARRES





## A P P E N D I C E 1

### DEFINITIONS RELATIVES AUX MASSES

Masse Atomique - Excès de Masse - Energie de Liaison -  
Energie de Séparation -  $Q_{\text{réaction}}$  -  $Q_{\beta}$

#### Définissons

$M_p$  = 938,2796 MeV masse du proton

$M_n$  = 939,5730 MeV masse du neutron

$M_e$  = 0,5110 MeV masse de l'électron

$u$  = 931,5016 MeV unité de masse atomique =  $\frac{M(^{12}\text{C})}{12}$

Soit un atome (N,Z) et  $A = N + Z$

\* sa masse  $\mathcal{M}_a$  est dite "masse atomique"

(la masse  $\mathcal{M}_v$  de son noyau est dite "masse nucléaire")

\* son énergie de liaison totale  $BE^T$  (de l'anglais "Binding Energy") est définie par :

$$\begin{aligned}\mathcal{M}_a &= Z \cdot M_p + N \cdot M_n + Z \cdot M_e - BE^T \\ &= Z(M_p + M_e) + N \cdot M_n - BE^T \quad (\text{Apl.1})\end{aligned}$$

$BE^T$  est une quantité qui a un sens physique : c'est l'énergie qui lie les constituants de l'atome.

$BE^T$  peut être scindée en deux :  $BE^T = BE^v + BE^e$

$\Delta BE^e$  est l'énergie de liaison des électrons (dite encore énergie d'ionisation totale), définie par :

$$\mathcal{M}_a = \mathcal{M}_v + Z \cdot M_e - BE^e$$

$\Delta BE^v$  est l'énergie de liaison nucléaire, définie par :

$$\mathcal{M}_v = Z \cdot M_p + N \cdot M_n - BE^v$$

$BE^v$  est l'énergie qui lie les constituants du noyau atomique

\* son énergie de liaison tabulée  $BE$  est définie par :

$$\mathcal{M}_a = Z \cdot M_H + N \cdot M_n - BE \quad (\text{Apl.1bis})$$

$M_H$  étant la masse de l'atome d'hydrogène.

On voit immédiatement que :

$$BE = BE^T - Z \cdot R$$

$R$  étant l'énergie d'ionisation de H (constante de Rydberg) :  $R = BE^e(H) = 13.6 \text{ eV}$

et sachant que  $M_H = \mathcal{M}_a(H) = 1 \cdot M_p + 1 \cdot M_e - R$

ou encore

$$BE = BE^{\nu} + (BE^e - Z \cdot R)$$

C'est cette quantité BE qui est donnée dans les tables [Wap 77]. Elle n'a pas une signification physique aussi directe que  $BE^T$  ou  $BE^{\nu}$ , mais permet en physique nucléaire de ne pas s'embarrasser d'une table des énergies électroniques. Remarquons que  $BE^e$  suit une loi en  $R \cdot Z^{2.39}$  [See 75] et donc  $BE^e \gg Z \cdot R$  pour  $Z > 5$ . Il en résulte que BE est beaucoup plus proche de  $BE^T$  que de  $BE^{\nu}$ .

\* son excès de masse atomique ME (de l'anglais "Mass-Excess") est défini par :

$$M_a = A \cdot u + ME \quad (\text{Ap1.2})$$

- . ME n'a pas de sens physique et sa définition dépend par ailleurs de la valeur adoptée pour u.
- . Mais c'est une quantité pratique à manipuler ou à tabuler.
- . De plus elle permet d'évaluer immédiatement la différence de masse de deux isobares, ce qui est très utile, entre autres, dans les mesures de  $Q_{\beta}$  et en spectrométrie de masse à très haute résolution.

Relation entre ME et BE

On peut écrire pour l'hydrogène ( $m_H$  étant son excès de masse) :

$$\begin{aligned} M_H &= 1 \cdot u + m_H \\ &= M_p + M_e - R \end{aligned}$$

$$\text{d'où} \quad m_H + u = M_p + M_e - R \quad (\text{Ap1.3})$$

Et pour le neutron :

$$M_n = u + m_n \quad (\text{Ap1.4})$$

$$\begin{aligned}
 (\text{Apl.1 et Apl.2}) \Rightarrow A \cdot u + ME &= Z(M_p + M_e) + N \cdot M_n - BE^T \\
 &= Z(m_H + u + R) + N(m_n + u) - BE^T \\
 &= Z \cdot m_H + N \cdot m_n + Au - BE^T + Z \cdot R \\
 &= Z \cdot m_H + N \cdot m_n + Au - BE
 \end{aligned}$$

d'où :

$ME + BE = Z \cdot m_H + N \cdot m_n$
---------------------------------------

(Apl.5)

soit en valeur numérique (en keV)

$$ME + BE = Z \cdot 7289.034 + N \cdot 8071.431$$

Définitions qui en découlent :

1) Energies de séparation de 1 ou 2 neutrons ou de 1 ou 2 protons :

*Exemple* : Energie de séparation de 2 neutrons :  $S_{2n}$  c'est la différence entre les énergies de liaison des atomes  $(N, Z)$  et  $(N-2, Z)$ . Elle correspond à l'énergie qu'il faudrait fournir pour arracher 2 neutrons à l'atome  $(N, Z)$

$S_{2n}(N, Z) = BE(N, Z) - BE(N-2, Z)$
--

(Apl.6)

ou, en fonction des excès de masse en utilisant la relation (Apl.5) :

$S_{2n}(N, Z) = 2m_n - [ME(N, Z) - ME(N-2, Z)]$
---

(Apl.7)

2) Energie de réaction  $Q_r$  :

$$Q_r = m_1 + m_2 - m_3 - m_4 \quad (\text{Apl.8})$$

$$\text{avec } \begin{cases} Z_1 + Z_2 = Z_3 + Z_4 \\ N_1 + N_2 = N_3 + N_4 \end{cases}$$

on en déduit immédiatement :

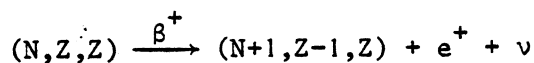
$$Q_r = ME_1 + ME_2 - ME_3 - ME_4 \quad (\text{Apl.9})$$

ou

$$Q_r = BE_3 + BE_4 - BE_1 - BE_2 \quad (\text{Apl.9bis})$$

3) Energie de désintégration  $\beta$  :  $Q_\beta$

. pour une désintégration  $\beta^+$  (nous notons  $(N, Z, Z')$  le noyau  $(N, Z)$  entouré de  $Z'$  électrons) :



en supposant la masse du neutrino nulle :

$$\begin{aligned} Q_{\beta^+} &= \mathcal{M}(N, Z) - [\mathcal{M}(N+1, Z-1) + M_e] - M_e - M_\nu \\ &= \mathcal{M}(N, Z) - \mathcal{M}(N+1, Z-1) - 2M_e \end{aligned} \quad (\text{Apl.10})$$

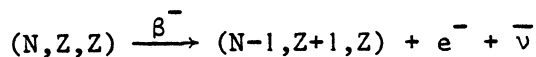
d'où

$$\boxed{Q_{\beta^+} = ME(N, Z) - ME(N+1, Z-1) - 2M_e} \quad (\text{Apl.11})$$

ou

$$Q_{\beta^+} = BE(N+1, Z-1) - BE(N, Z) + M_H - M_n - 2M_e \quad (\text{Apl.11bis})$$

. pour une désintégration  $\beta^-$ , de même :



$$\begin{aligned} Q_{\beta^-} &= \mathcal{M}(N, Z) - [\mathcal{M}(N-1, Z+1) + M_e] - M_e - M_\nu \\ &= \mathcal{M}(N, Z) - \mathcal{M}(N-1, Z+1) \end{aligned} \quad (\text{Apl.12})$$

d'où

$$\boxed{Q_{\beta^-} = ME(N, Z) - ME(N-1, Z+1)} \quad (\text{Apl.13})$$

ou

$$Q_{\beta^-} = BE(N-1, Z+1) - BE(N, Z) + M_n - M_H \quad (\text{Apl.13bis})$$

4) Energie de désintégration  $\alpha$  :  $Q_\alpha$

avec les mêmes notations

$$(N, Z, Z) \xrightarrow{\alpha} (N-2, Z-2, Z) + (2, 2, 0)$$

$$Q_\alpha = \mathcal{M}(N, Z) - [\mathcal{M}(N-2, Z-2) + 2M_e] - [\mathcal{M}(2, 2) - 2M_e]$$

$$= \mathcal{M}(N, Z) - \mathcal{M}(N-2, Z-2) - \mathcal{M}(\alpha) \quad (\text{Apl.14})$$

d'où

$$Q_\alpha = ME(N, Z) - ME(N-2, Z-2) - ME(\alpha) \quad (\text{Apl.15})$$

ou

$$Q_\alpha = BE(N-2, Z-2) + BE(\alpha) - BE(N, Z) \quad (\text{Apl.15bis})$$

$$\text{avec } ME(\alpha) = 2425 \text{ keV}$$

$$BE(\alpha) = 28296 \text{ keV}$$

5) Le lecteur intéressé pourra trouver dans [Wap 77] , à la page 217, l'expression de quelques autres quantités qui ne sont pas directement utilisées ici.

o o  
o

## A P P E N D I C E 2

### OPTIQUE MATRICIELLE

#### RAPPELS

Le système de référence est défini par rapport à la trajectoire centrale. L'axe Oy est porté par cette trajectoire. L'axe Ox est dans le plan de la trajectoire, donc parallèle à  $\vec{E}$  et perpendiculaire à  $\vec{B}$ . L'axe Oz enfin est perpendiculaire au plan de la trajectoire.

Un ion suivant une trajectoire quelconque sera défini par un vecteur à 5 composantes

$$\begin{pmatrix} X \\ \theta \\ \delta \\ Z \\ \varphi \end{pmatrix}$$

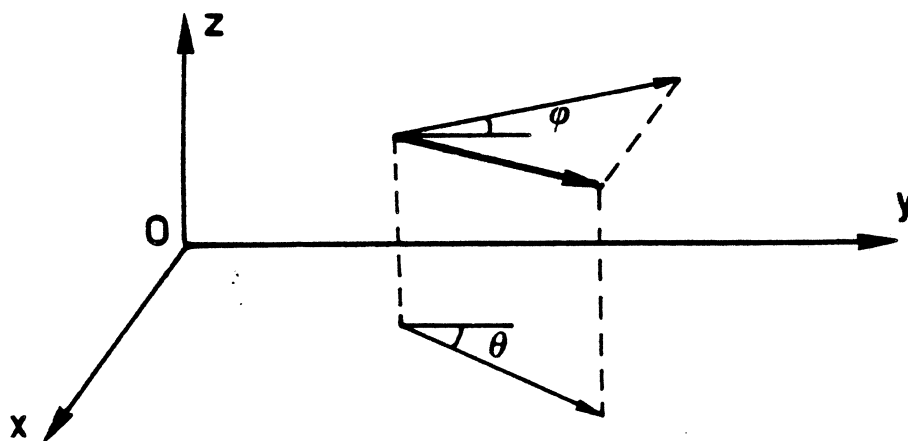


X et Z étant les coordonnées suivant Ox et Oz,

$\theta$  et  $\varphi$  les angles de cette trajectoire avec Oy, projetée respectivement sur xOy et yOz

$\delta$  étant la dispersion en moment

$$\delta = \frac{dP}{P} = \frac{1}{2} \frac{dE}{E}$$



Toute transformation (translation, rotation,...) du faisceau sera représentée par une matrice  $5 \times 5$ , dite matrice de transfert, S :

$$\begin{pmatrix} X_F \\ \theta_F \\ \delta_F \\ Z_F \\ \varphi_F \end{pmatrix} = S \times \begin{pmatrix} X_I \\ \theta_I \\ \delta_I \\ Z_I \\ \varphi_I \end{pmatrix} \quad (\text{Ap2.1})$$

Les coordonnées X et  $\theta$  sont indépendantes de Z et  $\varphi$  (espace orthonormé).

Si, de plus, comme c'est le cas ici, aucun des champs n'agit suivant Oz,  $\delta_F$  n'est fonction que de X et  $\theta$ . La matrice S peut alors se décomposer en 2 sous-matrices : l'une H de dimension  $3 \times 3$  qui agit dans le plan horizontal, l'autre V de dimension  $2 \times 2$ , dans le plan vertical.

$$\begin{pmatrix} x_F \\ \theta_F \\ \delta_F \end{pmatrix} = H \times \begin{pmatrix} x_I \\ \theta_I \\ \delta_I \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \begin{pmatrix} z_F \\ \varphi_F \end{pmatrix} = V \times \begin{pmatrix} z_I \\ \varphi_I \end{pmatrix} \quad (\text{Ap2.2})$$

### APPLICATION AU SPECTROMETRE DE MASSE

L'espace libre de glissement de longueur L est représenté par :

$$H = \begin{pmatrix} 1 & L & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad V = \begin{pmatrix} 1 & L \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$$

Le secteur électrostatique sphérique (rayon R, angle  $\phi$ ) par :

$$H = \begin{pmatrix} \cos \phi & R \sin \phi & 2R(1-\cos \phi) \\ -\frac{1}{R} \sin \phi & \cos \phi & 2 \sin \phi \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad V = \begin{pmatrix} \cos \phi & R \sin \phi \\ -\frac{1}{R} \sin \phi & \cos \phi \end{pmatrix}$$

Le champ magnétique homogène et droit (rayon R', angle  $\alpha$ ) par :

$$H = \begin{pmatrix} \cos \alpha & R' \sin \alpha & R'(1-\cos \alpha) \\ -\frac{\sin \alpha}{R'} & \cos \alpha & \sin \alpha \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad V = \begin{pmatrix} 1 & R' \alpha \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$$

Une face inclinée (d'entrée ou de sortie) d'un aimant sera prise en compte par :

$$H = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ \frac{\text{tg } \beta}{R'} & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad V = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{\text{tg } \beta}{R'} & 1 \end{pmatrix}$$

$\beta$  : angle de la normale à la face d'entrée ou de sortie avec l'axe Oy.

La succession de deux de ces transformations étant représentée par le produit de leurs matrices de transfert, on peut exprimer, par exemple, la transformation des coordonnées horizontales initiales ( $x_I, \theta_I, \delta_I$ ) d'un ion

quelconque en coordonnées finales ( $X_F$ ,  $\theta_F$ ,  $\delta_F$ ) (au niveau de la fente de sortie) par le produit suivant :

$$\begin{pmatrix} X_F \\ \theta_F \\ \delta_F \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & L_3 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ \gamma_2 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} C' & R'S' & R'(1-C') \\ -S'/R' & C' & S' \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \times$$

(Ap2.3)

$$\times \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ \gamma_1 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} 1 & L_2 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} C & RS & 2R(1-C) \\ -S/R & C & 2S \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} 1 & L_1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} X_I \\ \theta_I \\ \delta_I \end{pmatrix}$$

où l'on reconnaît en partant de la fin :

- . l'espace de glissement de longueur  $L_1 = 450$  mm entre la fente F.E. et le Secteur Electrostatique S.E.,
- . la matrice du S.E. avec  $C = \cos \phi$  et  $S = \sin \phi$ ,
- . l'espace de glissement  $L_2 = 337$  mm jusqu'à l'aimant,
- . une inversion des coordonnées d'espace (l'aimant étant à rotation gauche),
- . une face inclinée à l'entrée du champ avec  $\gamma_1 = \tan \beta_1 / R'$  et  $\beta_1$  ajustable de  $10^\circ$  à  $30^\circ$ ,
- . la matrice du champ magnétique avec  $C' = \cos \alpha$  et  $S' = \sin \alpha$ ,
- . la face inclinée de sortie avec  $\gamma_2 = \tan \beta_2 / R'$  et  $\beta_2 = 29^\circ$ ,
- . une réinversion des coordonnées d'espace,
- . un espace de glissement libre  $L_3$  (ajustable de 390 à 410 mm) jusqu'à la fente de sortie F.S..

Ces calculs peuvent être faits en tout point du spectromètre et dans les deux plans ; l'enveloppe du faisceau peut être calculée et tracée, etc... sur l'UNIVAC d'Orsay par le programme OPTICS mis au point par une équipe du laboratoire.

On trouve ainsi pour la matrice générale de la transformation, avec  $\beta_1 = 27^\circ 5$  et  $L_3 = 400$  mm :

$$\begin{pmatrix} X_F \\ \theta_F \\ \delta_F \\ Z_F \\ \varphi_F \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -0,92 & 0,006 & 0,005 & 0 & 0 \\ -1,43 & -1,09 & -1,69 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -0,91 & -0,39 \\ 0 & 0 & 0 & -0,75 & -1,43 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} X_I \\ \theta_I \\ \delta_I \\ Z_I \\ \varphi_I \end{pmatrix} \quad (\text{Ap2.4})$$

Il peut être intéressant d'avoir l'expression littérale de certains termes. Ainsi, la position finale  $X_F$  du faisceau peut s'écrire :

$$X_F = aX_I + b\theta_I + c\delta_I \quad (\text{Ap2.5})$$

les coefficients  $b$  et  $c$  sont importants car ils expriment les focalisations en direction et en énergie (ils doivent donc être nuls pour que  $X_F$  ne dépende ni de  $\theta_I$  ni de  $\delta_I$ ).

On obtient, donc, à partir de (Ap2.3) et après simplification, sachant que par construction  $L_1 = R$  et que  $C = S = \cos 45^\circ$  :

$$\begin{aligned} b &= 2CL_1(C' + \gamma_1 R'S') + 2CL_1(C'\gamma_2 + C'\gamma_1 + \gamma_1\gamma_2 R'S' - \frac{S'}{R})L_3 \\ c &= 2(C' + \gamma_1 R'S')[R(1-C) + SL_2] + 2SR'S' - R'(1-C) + 2L_3S(R'S'\gamma_2 + C') \\ &\quad + 2L_3(C'\gamma_2 + \gamma_1\gamma_2 R'S' - \frac{S'}{R} + C'\gamma_1)[R(1-C) + SL_2] - L_3R'(1-C')\gamma_2 - L_3S' \end{aligned} \quad (\text{Ap2.6})$$

Les paramètres ajustables sont  $\gamma_1$ , lié à l'angle d'entrée de l'aimant ;  $L_3$ , la position longitudinale de F.S. et dans une moindre mesure  $L_2$ , distance S.E.-aimant, que nous fixons à 337 mm pour le moment. (Nous remarquons en effet que  $b$  n'est pas fonction de  $L_2$  et le calcul montre que l'influence de  $L_2$  dans l'équation  $c = 0$  est négligeable : si  $L_2$  augmente de 7 mm,  $L_3$  varie de 0,1 mm pour garder  $c$  nul.

L'annulation de  $b$  et  $c$  dans (Ap2.6) donne un système de 2 équations non linéaires à 2 inconnues ( $\gamma_1$  et  $L_3$ ) pour lequel une solution existe.



## A P P E N D I C E 3

### CALCULS D'INCERTITUDE

#### A - CENTRE DE GRAVITE D'UN PIC ("MEAN") ET ECART-TYPE

Ayant défini "MEAN", pour le pic d'une distribution  $y_i(x_i)$ , par

$$M = \frac{\sum_i x_i (y_i - b_i)}{\sum_i (y_i - b_i)} \quad (\text{Ap3.1})$$

nous évaluerons l'incertitude sur "MEAN" en considérant que le bruit de fond est constant :

$$b_i = \frac{y_g + y_d}{2} = b \quad (\text{Ap3.2})$$

$y_g$  et  $y_d$  étant le fond par canal à gauche et à droite à l'extérieur du pic. Cette hypothèse est justifiée puisque la production est continue. Le calcul d'incertitude donne alors :

$$\sigma_M^2 \left\{ \sum_i (y_i - b) \right\}^2 = \sum_i \left\{ \alpha_i^2 \sigma_{y_i}^2 \right\} + \left\{ \sum_i \alpha_i \right\}^2 \sigma_b^2 \quad (\text{Ap3.3})$$

avec  $\alpha_i = M - x_i$  et  $\sigma_M$ ,  $\sigma_{y_i}$  et  $\sigma_b$  étant les incertitudes sur  $M$ ,  $y_i$  et  $b$  ( $\sigma_{y_i} = \sqrt{y_i}$  et  $\sigma_b = \frac{1}{2} \sqrt{y_g + y_d}$ ).

L'écart-type est donné par  $\ell$  (cf. B-III-3a, p. 53) tel que :

$$v = \ell^2 = \frac{\sum_i (x_i - M)^2 (y_i - b_i)}{\sum_i (y_i - b_i)} \quad (\text{Ap3.4})$$

En vertu du théorème de Koenig, nous pouvons écrire :

$$v = \ell^2 = \frac{\sum_i x_i^2 (y_i - b_i)}{\sum_i (y_i - b_i)} - \left[ \frac{\sum_i x_i (y_i - b_i)}{\sum_i (y_i - b_i)} \right]^2 \quad (\text{Ap3.5})$$

On obtient, avec la même hypothèse sur  $b_i$  :

$$\sigma_\ell^2 \times 4\ell^2 \left\{ \sum_i (y_i - b) \right\}^2 = \sum_i \left\{ \beta_i^2 \sigma_{y_i}^2 \right\} + \left\{ \sum_i \beta_i \right\}^2 \sigma_b^2 \quad (\text{Ap3.6})$$

avec  $\beta_i = \alpha_i^2 - \ell^2$  et  $\sigma_\ell$  étant l'incertitude sur  $\ell$ .

L'analogie littérale des seconds membres des équations (Ap3.3) et (Ap3.6) permet d'alléger le programme de calcul par une écriture commune de ces parties.

## B - INCERTITUDE EXPERIMENTALE SUR LA MASSE

L'expression de la masse  $M_A$ , mesurée dans la séquence (A,B,C), en fonction des masses de référence  $M_B$  et  $M_C$  et des tensions  $V_A$ ,  $V_B$ ,  $V_C$ , est (éq. B.4 ; p. 43) :

$$M_A = \frac{M_B M_C (V_C - V_B)}{(M_B - M_C) V_A + M_C V_C - M_B V_B} = \frac{N}{D} \quad (\text{Ap3.7})$$

(N = numérateur ; D = dénominateur)

que nous représentons par la fonctionnelle f :

$$M_A = f(V_A, V_B, V_C, M_B, M_C) \quad (\text{Ap3.8})$$

avec pour  $V_A$ ,  $V_B$  et  $V_C$  (éq. B.9 ; p. 55) :

$$V_A = V_A^0 + \frac{1}{2} \left[ \frac{1}{2v_{ch}} - (A_2 - A_1) \right] v_{ch} \quad (\text{Ap3.9})$$

Appliquons la méthode du calcul d'incertitude à  $M_A$  :

$$\begin{aligned} dM_A = & \frac{\partial f}{\partial V_A} \left( \frac{\partial V_A}{\partial V_A^0} dV_A^0 + \frac{\partial V_A}{\partial A_1} dA_1 + \frac{\partial V_A}{\partial A_2} dA_2 + \frac{\partial V_A}{\partial v} dv + \frac{\partial V_A}{\partial t_{ch}} dt_{ch} + \frac{\partial V_A}{\partial v_{ch}} dv_{ch} \right) \\ & + \frac{\partial f}{\partial V_B} \left( \begin{array}{ccccccccc} . & + & . & + & . & + & . & + & . \end{array} \right) \\ & + \frac{\partial f}{\partial V_C} \left( \begin{array}{ccccccccc} . & + & . & + & . & + & . & + & . \end{array} \right) \\ & + \frac{\partial f}{\partial M_B} dM_B \\ & + \frac{\partial f}{\partial M_C} dM_C \end{aligned} \quad (\text{Ap3.10})$$

avec (en posant :  $i = M_B - M_A$  et  $j = M_C - M_B$  les "sauts de masse")



$$\begin{aligned} \frac{\partial f}{\partial V_A} &= \frac{jM_A}{D} & \frac{\partial f}{\partial V_B} &= \frac{-(i+j)M_B}{D} & \frac{\partial f}{\partial V_C} &= \frac{iM_C}{D} \\ \frac{\partial f}{\partial M_B} &= \frac{M_C(V_C - V_B) - M_A(V_A - V_B)}{D} & \frac{\partial f}{\partial M_C} &= \frac{M_A(V_A - V_C) - M_B(V_B - V_C)}{D} \end{aligned}$$

et

$$\begin{aligned} \frac{\partial V_A}{\partial V_A^0} &= 1 & \frac{\partial V_A}{\partial A_1} &= + \frac{1}{2} v_{ch} & \frac{\partial V_A}{\partial A_2} &= - \frac{1}{2} v_{ch} \\ \frac{\partial V_A}{\partial v} &= - \frac{v_{ch}}{4} \times \frac{1}{v_{t_{ch}}^2} & \frac{\partial V_A}{\partial t_{ch}} &= - \frac{v_{ch}}{4} \times \frac{1}{v_{t_{ch}}^2} & \frac{\partial V_A}{\partial v_{ch}} &= \frac{1}{4v_{t_{ch}}} - \frac{A_2 - A_1}{2} \end{aligned}$$

\* Les termes en  $dV_A^0, dV_B^0$  et  $dV_C^0$  dans (Ap3.10) donnent l'incertitude en masse due à la mesure de la tension du S.E., que nous appelons l'"erreur volt"  $\sigma_{volt}$  :

$$\sigma_{volt}^2 = \frac{j^2 M_A^2}{D^2} dV_A^0{}^2 + \frac{(i+j)^2 M_B^2}{D^2} dV_B^0{}^2 + \frac{i^2 M_C^2}{D^2} dV_C^0{}^2$$

Sachant que les trois  $dV^0$  correspondent à des mesures de tension dans les mêmes conditions de dérive, de durée de cycle et de nombre de cycles dans la mesure de masse (cf. B-III-2b ; p. 50), nous pouvons poser :

$$dV_A^0{}^2 = dV_B^0{}^2 = dV_C^0{}^2 = \sigma(V)^2$$

Dans le calcul d'incertitude, nous pouvons négliger  $\delta$  (la fonction d'appareil) par rapport à  $V$ , d'où :

$$M_A V_A = M_B V_B = M_C V_C$$

il vient alors, après simplification :

$$\boxed{\sigma_{volt} = \frac{\sqrt{i^2 + j^2 + (i+j)^2}}{j} \frac{M}{V} \sigma(V)} \quad (\text{Ap3.11})$$

\* Les termes en  $dA_1, dA_2, dB_1, dB_2, dC_1$  et  $dC_2$  donnent l'"erreur statistique" sur la masse  $M_A, \sigma_{stat}$  :

$$\sigma_{\text{stat}}^2 = \frac{v_{\text{ch}}^2}{4D^2} \left[ j^2 M_A^2 (dA_1^2 + dA_2^2) + (i+j)^2 M_B^2 (dB_1^2 + dB_2^2) + i^2 M_C^2 (dC_1^2 + dC_2^2) \right]$$

avec des approximations analogues à celles ci-dessus, et en posant  $dA_1^2 \approx dA_2^2 = \sigma_A^2$ , on arrive à :

$$\sigma_{\text{stat}}^2 = \frac{v_{\text{ch}}^2}{2} \times \frac{M_A^2}{V_A^2 (V_C - V_B)^2} \left\{ (V_B - V_C)^2 \sigma_A^2 + (V_A - V_C)^2 \sigma_B^2 + (V_A - V_B)^2 \sigma_C^2 \right\}$$

(Ap3.12)

\* Les termes en  $dv_{\text{ch}}$  donnent l'incertitude sur le centrage des pics,  $\sigma_{v_{\text{ch}}}$ . C'est cette incertitude que nous cherchons à rendre négligeable en recentrant les pics à chaque mesure. Après regroupement des termes et simplification, on obtient, avec l'approximation  $M_A V_A = M_B V_B = M_C V_C$  :

$$\sigma_{v_{\text{ch}}} = \frac{M_A}{2V_A (V_B - V_C)} \left[ (V_B - V_C)(A_2 - A_1) + (V_C - V_A)(B_2 - B_1) + (V_A - V_C)(C_2 - C_1) \right] \sigma(v_{\text{ch}})$$

(Ap3.13)

Ce calcul a été effectué systématiquement et a montré que, dans la très grande majorité des cas, cette incertitude était très inférieure à  $\sigma_{\text{stat}}$ . Quand elle ne l'était pas, nous en avons bien sûr tenu compte.

\* Les termes en  $dv$  et  $dt_{\text{ch}}$  font apparaître, après regroupement et simplification, et sans aucune approximation, des coefficients identiquement nuls.

\* Les termes en  $dM_B$  et  $dM_C$  donnent l'incertitude due aux masses de référence. En négligeant  $\delta$ , et après simplification, on trouve :

$$\sigma_{M_B} = \frac{M_A}{M_B} \times \frac{i+j}{j} \sigma(M_B)$$

(Ap3.14)

$$\sigma_{M_C} = \frac{M_A}{M_C} \times \frac{i}{j} \sigma(M_C)$$

(Ap3.14bis)



## A P P E N D I C E 4

### CALIBRATION DE LA MODULATION DE BALAYAGE

Nous proposons d'évaluer la correspondance entre les positions d'un pic sur un spectre du multiéchelle et les valeurs de la tension de balayage. Ainsi, la détermination de la position du centre d'un pic donnera l'incrément de tension subi par le faisceau et permettra donc de calculer la tension totale qui lui est appliquée.

Nous allons d'abord examiner trois hypothèses d'école, de complexité croissante, pour lesquelles nous établirons cette correspondance entre canaux et tensions. Le cas qui nous intéresse dans notre méthode est évidemment le troisième. Nous considérerons ensuite comment réaliser expérimentalement les étalonnages.

Considérons que le pic d'une masse  $M_0$  soit parfaitement centré pour les valeurs  $U_0$  de la H.T. source et  $V_0$  du S.E., avec dans toute la suite de l'exposé la relation  $U_0 = kV_0$  (cf. éq. (A.4) dans A-IV-2 :  $k = 14.0625$ ). Désignons par  $\delta U$  et  $\delta V$  des variations que nous pouvons imposer à  $U$  et  $V$  et observons le déplacement du pic de  $dn$  canaux qui en résulte, dans les trois cas de figure suivants :

1<sup>er</sup> cas :  $U$  et  $V$  varient dans le même rapport :

$$\left. \begin{array}{l} V_0 \rightarrow V_0 + \delta V \\ U_0 \rightarrow U_0 + \delta U \end{array} \right\} \text{ avec } \delta U = k\delta V$$

cela revient à considérer que le spectromètre est réglé sur une masse fictive  $M_0 + \delta M = M_0 \times \frac{V_0}{V_0 + \delta V}$

Le pic de la masse  $M_0$  apparaîtra  $dn_1$  canaux plus bas avec

$$dn_1 = \frac{\delta V}{v_{\text{ch réel}}}$$

$v_{\text{ch réel}}$  étant la tension réelle, par canal, de la modulation de balayage.

2<sup>e</sup> cas : seule la H.T. source varie :

$$\begin{array}{l} V_0 \rightarrow V_0 \\ U_0 \rightarrow U_0 + \delta U \end{array}$$

ici tout dépend de la forme de la fonction  $V = f(U)$ . Dans le cas idéal d'une focalisation en énergie absolue, cette fonction est une droite horizontale (cf. A-IV-4) et quel que soit  $U_0$ , les pics apparaissent toujours au même endroit :  $dn_2 = 0$ .

Dans le cas concret représenté sur la figure 10, le déplacement va dépendre du point de fonctionnement  $(U_0, V_0)$  et plus exactement de la dérivée de la fonction  $V = f(U)$  en ce point. La variation équivalente de la tension S.E. est :

$$dV = \left( \frac{\partial V}{\partial U} \right)_{U_0} \delta U$$

$$\text{d'où : } dn_2 = \frac{1}{v_{\text{ch}_{\text{réel}}}} \left( \frac{\partial V}{\partial U} \right)_{U_0} \delta U$$

3<sup>e</sup> cas : seule la tension du S.E. varie :

$$V_0 \rightarrow V_0 + \delta V$$

$$U_0 \rightarrow U_0$$

c'est le cas qui nous concerne puisque nous souhaitons ne pas balayer la haute tension  $U_0$ . Pour la clarté nous allons décomposer cette transformation en deux (avec un état intermédiaire fictif) :

$$\begin{array}{ll} V_0 \rightarrow V_0 & \text{puis } V_0 \rightarrow V_0 + \delta V \\ U_0 \rightarrow U_0 - \delta U & U_0 - \delta U \rightarrow U_0 \end{array}$$

$$\text{avec } \delta U = k\delta V$$

nous y reconnaissons le 2<sup>e</sup> cas avec un  $\delta U$  changé de signe puis le 1<sup>er</sup> cas. Les déplacements du pic seront successivement :

$$dn_2 = - \frac{1}{v_{\text{ch}_{\text{réel}}}} \left( \frac{\partial V}{\partial U} \right)_{U_0} \delta U \quad \text{et} \quad dn_1 = \frac{\delta V}{v_{\text{ch}_{\text{réel}}}}$$

le déplacement total apparent sera donc

$$\begin{aligned} dn_3 &= \frac{\delta V}{v_{\text{ch}_{\text{réel}}}} \left[ 1 - k \left( \frac{\partial V}{\partial U} \right)_{U_0} \right] \\ &= \frac{\delta V}{v_{\text{ch}_{\text{app}}}} \end{aligned}$$

$v_{\text{ch}_{\text{app}}}$  étant dans ce cas-ci la tension par canal apparente de la modulation de balayage

$$v_{\text{ch}_{\text{app}}} = \frac{v_{\text{ch}_{\text{réel}}}}{1 - k \left( \frac{\partial V}{\partial U} \right)_{U_0}}$$

Remarquons qu'alors que  $v_{\text{chréel}}$  est une constante dans la limite donnée par le générateur B.F.,  $v_{\text{chapp}}$  est une fonction de  $\frac{\partial V}{\partial U}$ .

Etudions à présent comment mesurer expérimentalement les quantités  $v_{\text{chréel}}$  ou  $v_{\text{chapp}}$ . Il est nécessaire de balayer le faisceau et ceci obligatoirement en modulant la tension  $V_0$  du secteur. La H.T. source peut être ou ne pas être modulée.

i - Supposons qu'on module la H.T. source :

- . on réalise une première mesure avec  $V_0$  et  $U_0$  qui fait apparaître un pic à la position zéro ;
- . on réalise une seconde mesure avec cette fois-ci  $V' = V_0 + dV$  et  $U' = U_0 + dU = kV'$ . Le spectromètre est ainsi réglé sur la masse fictive  $M' = M_0 + dM$  et le pic de la masse  $M_0$  apparaît dn canaux plus bas (pour des tensions  $V' - dV$  et  $U' - dU$ ). Ceci correspond au 1<sup>er</sup> cas de figure examiné plus haut. Le rapport  $dV/dn$  représente donc le  $v_{\text{chréel}}$ .

ii - Supposons qu'on ne balaye pas la H.T. source :

La première mesure étant faite comme ci-dessus, la seconde peut être faite de deux façons différentes :

1<sup>ère</sup> méthode : on prend  $V' = V_0 + dV$  et  $U' = U_0 + dU$  comme ci-dessus, mais ici seul  $V'$  est balayé. Le pic de la masse  $M_0$  apparaît dn canaux plus bas et pour des tensions  $V' - dV$  et  $U'$ , ce qui correspond au cas n° 3. Le rapport de  $dV/dn$  donne donc ici le  $v_{\text{chapp}}$ .

2<sup>e</sup> méthode : qu'arriverait-il si on ne réglait pas la H.T. source, c'est-à-dire si on prenait  $V' = V_0 + dV$  et on gardait  $U_0$  ?  
Le pic de la masse  $M_0$  apparaîtrait pour des tensions  $V' - dV$  et  $U_0 = U' - dU$ , ce qui correspond au cas n° 1 et on obtiendrait ainsi de nouveau le  $v_{\text{chréel}}$ .

En conclusion, étant donné que nous désirons ne pas balayer la H.T. source (cas n° 3), il nous faut avoir un  $v_{\text{chapp}}$ . Pour mesurer ce dernier directement, sans avoir à évaluer la fonction  $V = f(U)$  et sa dérivée, il suffit, lors de la calibration, d'opérer comme dans la première méthode de ii : fixer la H.T. source dans le rapport  $k$ , défini plus haut, à la tension moyenne du S.E..

o o  
o





## A P P E N D I C E 5

### METHODE DES MOINDRES CARRES

Soit un ensemble d'équations linéaires

$$\sum_j k_j^i m_j = b_i^0 \quad (\text{Ap5.1})$$

avec  $i = 1$  à  $M$ , les  $M$  équations et  $j = 1$  à  $N$ , les  $N$  masses inconnues ( $M > N$ ). En notation matricielle, nous pouvons écrire, les lettres minuscules représentant des vecteurs-colonnes :

$$K m = b^0 \quad (\text{Ap5.2})$$

avec l'incertitude-colonne  $\sigma$  sur  $b^0$ .  $K$  est une matrice rectangulaire  $(M,N)$  de rang  $N$ .

Les  $b_i^0$  sont déterminés avec une incertitude  $\sigma_i$  ; nous définissons donc des variations  $\xi_i$  sur les  $b_i^0$  et des échantillons  $b_i$  :

$$b_i = b_i^0 + \xi_i \quad (\text{Ap5.3})$$

Les variations  $\xi_i$  sont indépendantes, normales (de largeur  $\sigma_i$ ) et centrées sur zéro ; les  $b_i$  sont centrés sur  $b_i^0$ . Les densités de probabilité de ces derniers s'écrivent :

$$p_i(b_i) = \frac{1}{\sigma_i \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(b_i - b_i^0)^2}{2\sigma_i^2}} \quad (\text{Ap5.4})$$

La fonction de vraisemblance de l'échantillon  $b$  est donc :

$$L(b) = \frac{1}{(2\pi)^{N/2} \prod_i \sigma_i} e^{-\sum_i \frac{(b_i - b_i^0)^2}{2\sigma_i^2}} \quad (\text{Ap5.5})$$

le maximum de vraisemblance est obtenu pour des valeurs  $\tilde{m}$  (donnant  $\tilde{b} = K\tilde{m}$ ) telles que :

$$\sum_i \frac{(\tilde{b}_i - b_i^0)^2}{2\sigma_i^2} \quad \text{soit minimum} \quad (\text{Ap5.6})$$

d'où l'appellation "Méthode des Moindres Carrés".

En introduisant la matrice diagonale des poids statistiques  $W$ , telle que :

$$w_{ij} = \delta_{ij} \frac{1}{\sigma_i^2} \quad (\text{Ap5.7})$$

la condition (Ap5.6) s'écrit sous forme matricielle

$${}^t(\tilde{b} - b^0)W(\tilde{b} - b^0) \quad \text{minimum} \quad (\text{Ap5.8})$$

la minimisation étant opérée, bien entendu, par rapport aux masses inconnues  $m$  contenues dans  $b$ .

On démontre (voir [Lin 63]) que la condition (Ap5.8) devient :

$$t_{KW}(\hat{b} - b^o) = 0 \quad (\text{Ap5.9})$$

d'où 
$$t_{KWK\hat{m}} = t_{KWb^o} \quad (\text{Ap5.10})$$

qui est appelé "système des équations normales".

Nous définissons la matrice "normale" A :

$$A = t_{KWK} \quad (\text{Ap5.11})$$

c'est une matrice carrée (N,N), symétrique et régulière, donc inversible, d'où

$$\boxed{\hat{m} = A^{-1} t_{KWb^o}} \quad (\text{Ap5.12})$$

$A^{-1}$  est dite "Matrice des Erreurs" et ses éléments diagonaux  $\hat{\sigma}_{ii}^2$  sont les variances des masses  $\hat{m}_i$  qui viennent d'être déterminées.

On déduit immédiatement les quantités ajustées  $\hat{b} = K\hat{m}$ , ce qui permet d'avoir pour chaque équation, son degré de cohérence :

$$\text{Coh}_i = \frac{\hat{b}_i - b_i^o}{\sigma_i} \quad (\text{Ap5.13})$$

o o  
o



## REFERENCES

- |         |   |   |
|---------|---|---|
| Ald 56  | K. Alder et al. ; Rev. Mod. Phys. 28 (1956)<br>432  | 151,153                                     |
| Azu 79  | R.E. Azuma et al. ; Phys. Lett. 86B (1979) 5  | 148,159,163                                 |
| Bar 63  | R.C. Barber et al. ; Vienne, 1963, p. 393   | 45,46,47                                    |
| Bar 64  | R.C. Barber et al. ; Phys. Rev. Letters 12,<br>(1964) 597.                                | 3,149                                       |
| Bar 80  | R.C. Barber et al. ; East Lansing, 1979, p. 257   | 42  |
| Bar 81  | R.C. Barber, Comm.privée, juin 1981   | 144,145                                     |
| Bau 76  | M. Bauer, ADNDT 17 (1976) 442   | 167   |
| Bei 75  | M. Beiner et al. ; Nucl. Phys. A238 (1975) 29   | 127   |
| Bei 75a | M. Beiner et al. ; Nucl. Phys. A249 (1975) 1  | 125,162,171,173                             |
| Bei 76  | M. Beiner et al. ; ADNDT 17 (1976) 450  | 125,154                                     |
| Ben 58  | N. Benczer-Koller ; Thèse, Columbia Univ., 1958   | 100   |
| Ben 66  | J.L. Benson et W.H. Johnson ; Phys. Rev. 141 (1966)<br>1112                               | 46,47                                       |
| Bet 36  | H.A. Bethe et R.F. Bacher ; Rev. Mod. Phys. 8<br>(1936) 82                                | 122   |
| Bla 80  | J.M. Blair et al. ; East Lansing 1979, p. 267   | 42  |
| Ble 36  | W. Bleakney ; Amer. Phys. Teacher 4 (1936) 12   | 23  |
| Boh 69  | A. Bohr et B.R. Mottelson ; Nuclear Structure<br>(W.A. Benjamin, N.Y. et Amsterdam, 1969) | 143   |
| Bos 78  | K. Bos, Thèse Amsterdam 1978  | 81,85                                       |
| Bre 81  | D.S. Brenner et al. ; Helsingør 1981, p. 129  | 107,110,111                                 |
| Cai 74  | M. Caillau ; Thèse, Orsay, mai 1974   | 159   |
| Cam 57  | A.G.W. Cameron ; Can. J. Phys. 35 (1957) 1021   | 122   |
| Cam 75  | X. Campi et al. ; Nucl. Phys. A251 (1975) 193   | 149   |
| Cam 80  | X. Campi et M. Epherre, Phys. Rev. C22 (1980)<br>2605                                     | 125,147,149,<br>163                         |
| Che 70  | E. Cheifetz et al. ; Phys. Rev. Letters 25<br>(1970) 38                                   | 145   |
| Che 70a | E. Cheifetz, Leysin 1970, p. 883  | 153   |
| Cla 74  | R.E. Clark et al., Rochester 1973   | 159   |
| Com 76  | E. Comay et I. Kelson, ADNDT 17 (1976) 463  | 122,129,130,<br>131,134,154,<br>162,171,173 |

Dah 73	P. Dahl ; Introduction to Electron and Ion Optics, Acad. Press 1973	23
D'Au 76	J.M. D'Auria et al. ; Cargèse 1976, p. 100	114
D'Au 77	J.M. D'Auria et al. ; Phys. Lett. 66B (1977) 233	143
D'Au 78	J.M. D'Auria et al. ; Nucl. Phys. A301 (1978) 397	114
Dec 80	R. Decker et al. ; Z. Physik, A294 (1980) 35	106,107,110
Dem 78	R.A. Demirkhanov et al. ; Sov. J. Nucl. Phys. 28 (1978) 137	42
DeS 79	M. de Saint Simon ; non publié	19
Die 59	L.A. Dietz ; Rev. Sci. Instr. 30 (1959) 235	16
Die 60	L.A. Dietz et al. ; Analytical Chemistry 32 (1960) 1276	16,19
Eks 77	C. Ekström et al. ; Nucl. Phys. A292 (1977) 144	100
Eks 78	C. Ekström et al. ; Phys. Lett. 76B (1978) 565	100
Eks 78b	C. Ekström et al. ; Nucl. Phys. A311 (1978) 269	86,100
Eks 79	C. Ekström et al. ; Phys. Scripta 19 (1979) 516	100
Eph 79	M. Epherre et al. ; Phys. Rev. C19 (1979) 1504	81,111,112
Eph 80	M. Epherre et al. ; Nucl. Phys. A340 (1980) 1	81
Ewa 80	G.T. Ewann et al. ; Z. Physik A296 (1980) 223	109
Fed 79	P. Federman et S. Pittel ; Phys. Rev. C20 (1979) 820	163
Fis 78	H. Fischer et al. ; Z. Physik. A284 (1978) 3	100
Flo 73	H. Flocard et al. ; Nucl. Phys. A203 (1973) 433	127,128
Gam 30	G. Gamow, Proc. Roy. Soc. London A126 (1930) 632	122
Gar 66	G.T. Garvey et I. Kelson ; Phys. Rev. Letters 16 (1966) 197	121
Gar 78	U. Garg et al. ; Phys. Rev. Lett. 40 (1978) 831	102
Gen 77	J. Genevey-Rivier et al. ; Nucl. Phys. A283 (1977) 45	100
Gen 81	J. Genevey et al. ; Lyon 1981	100,102
Gie 54	C.F. Giese et T.L. Collins ; Phys. Rev. 96 (1951) 823	45,47

Gil 81	R.L. Gill et al. ; Helsingør 1981, p. 569	153
Gow 81	G.M. Gowdy et al. ; Helsingør 1981, p. 562	153
Gro 76	H.V. Groote et al. ; ADNDT 17 (1976) 418	123,124,129,130 131,133,135,136 154,155,161,162 167,170,172,173 175
Grü 70	J.W. Grüter et al. ; Leysin 1970, p. 967	159
Har 77	J. Hardy et al. ; Phys. Lett. 71B (1977) 307	106
Hor 72	B. Hornshøj et al. ; Nucl. Phys. A187 (1972) 599	114
Iso 79	ISOLDE, Internal report 30.3.79	13
Jän 76	J. Jänecke ; ADNDT 17 (1976) 455	122,129,130,131, 134,154,161,162, 171,173
Jän 76a	J. Jänecke et B.P. Eynon ; ADNDT 17 (1976) 467	122,129,130,131 134,154,161,162 171,173
Jar 74	R.G. Jared et al. Rochester 1973, p. 211	159
Joh 65	S.A.E. Johansson ; Nucl. Phys. 64 (1965) 147	159
Joh 57	W.H. Johnson Jr. et A.O. Nier ; Phys. Rev. 105 (1957) 1014	149
Joh 70	W.H. Johnson Jr., Leysin 1970, p. 307	3
Kaf 76	N. Kaffrel et al. ; Cargèse 1976, p. 483	145,159
Kel 63	I. Kelson ; Phys. Rev. 132 (1963) 2189	125
Key 78	U. Keyser et al.; J. Phys. G4 (1978) L119	145
Key 81	U. Keyser et al. ; Helsingør 1981, p. 116	100,106,107,108, 110,111,112
Kha 76	T.A. Khan et al. ; Cargèse 1976, p. 488	145
Kla 66	R. Klapisch ; Thèse, Orsay, juin 1966	4,35
Kla 73	R. Klapisch et al. ; Phys. Rev. Lett. 31 (1973) 118	43
Kra 74	H.J. Krappe et J.R. Nix ; Rochester 1973, p. 159	123
Kra 79	H.J. Krappe et al. ; Phys. Rev. C20 (1979) 992	123
Led 78	C.M. Lederer et V.S. Shirley ; Table of Isotopes 7th edition, Wiley NY, 1978	100,117,157
Lia 81	C.F. Liang et al., Helsingør 1981, p. 485	100
Lin 63	Y.V. Linnik ; Méthode des Moindres Carrés (Dunod, Paris 1963)	85,209
Lir 76	S. Liran et N. Zeldes ; ADNDT 17 (1976) 431	124,129,130,131, 134,135,136,149, 162,171,173



Mac 66	J.D. Macdougall et al. ; Z. Naturforsch. 21a (1966) 63	47
Mar 80	G. Marguier et al. ; Nucl. Phys. A342 (1980) 301	100
Mar 81	G. Marguier et al. ; J. Phys. G7 (1981) 101	100
Mar 76	S. Maripuu ; "1975 Mass Prediction", ADNDT 17 (1976)	84,128
Mat 77	H. Matsuda et al. ; Int. J. Mass Spectrom. Ion Phys. 25 (1977) 229	29
Mat 81	S. Mattsson et al. ; Helsingør 1981, p. 430	159
Mol 81	D.M. Moltz et al. ; Helsingør 1981, p. 141	106,107
Möl 80	P. Möller et J.R. Nix ; Preprint LA-UR-80-1996, Juil. 80	123,129,130, 131,134,154, 161,162,170, 172,173
Mon 80	J.E. Monahan et F.J.D. Serduke ; East Lansing 1979, p. 151	122
Mon 76	E. Monnard et al. ; Cargèse 1976, p. 477	145
Mon 76a	E. Monnard et B. Fogelberg ; Cargèse 1976 ; p. 503	153
Mon 81	E. Monnard; Comm. privée , juin 1981	153
Mül 81	A. Müller; Comm. privée, janvier 1981	158,159
Mye 66	W.D. Myers et W.J. Swiatecki ; Nucl. Phys. 81 (1966) 1	122,123,129, 130,131,134, 135,136,154, 155,161,162, 170,172,173, 174,175,176
Mye 76	W.D. Myers ; ADNDT 17 (1976) 411	123,129,130, 131,134,136, 154,162,170, 172,177
Mye 77	W.D. Myers ; Droplet Model of Atomic Nuclei (IFI/Plenum NY, 1977)	123,160,161, 173,177
Nie 51	A.O. Nier et T.R. Roberts ; Phys. Rev. 81 (1951) 507	45,46
Nil 55	S.G. Nilsson ; Mat. Fys. Medd. Dan. Selsk 29 (1955) n°16	124
Nil <sub>B</sub> 69	B. Nilsson ; Nucl. Phys. A129 (1969) 445	123
Nil <sub>S</sub> 69	S.G. Nilsson ; Nucl. Phys. A131 (1969) 1	157
Peu 79a	P. Peuser et al. ; Nucl. Phys. A332 (1979) 95	111,112
Peu 80	P. Peuser et al. ; Grenoble 1979, p. 288	107,110,111
Pin 79	J.A. Pinston et al. ; Grenoble 1979, p. 258	153
Put 81	J.C. Putaux et al. ; Zinal 1980, p. 321	12
Qui 56	K.S. Quisenberry et al. ; Phys. Rev. 102 (1956) 1071	45
Que 76	P. Quentin ; Cargèse 1976, p. 124	128

Rag 74	I. Ragnarsson et al.; Nucl. Phys. A233 (1974) 329	153
Rag 80a	I. Ragnarsson ; East Lansing 1979, p. 87	149,163
Rav 75	H.L. Ravn et al.;Nucl. Instr. and Meth. 123 (1975) 131	12
Rav 76	H.L. Ravn et al.;Nucl. Instr. and Meth. 139 (1976) 267	13,15
Rav 79	H.L. Ravn; Phys. Rep. 54 (1979) 201	9
Rig 72	C. Rigaud; Thèse, Orsay, décembre 1972	3,4,42,43, 47,50,53
Rip 68	G. Ripka; Advances in Nuclear Physics (M.Baranger et E. Vogt, eds) (Plenum Press, N.Y. 1968) vol. 1, p.I83	125
Rit 81	B.G. Ritchie et al.; Phys. Rev. C23 (1981) 2342	100,102
Rud 66	G. Rudstam; Z. Naturforsch. 21a (1966) 1027	11
Sak 77	M. Sakai; ADNDT 20 (1977) 441	145,148,152, 153,159
Sch <sub>a</sub> 79	D. Schardt et al.; Nucl. Phys. A326 (1979) 65	117
Sch <sub>u</sub> 80	F. Schussler et al.; Nucl. Phys. A339 (1980) 415	100
Sch <sub>u</sub> 81	F. Schussler et al.; Helsingør 1981, p. 589	153
Sco 79	S.M. Scott et al.; J. Phys. G5 (1979) L487	153
Sco 80	S.M. Scott et al.; J. Phys. G6 (1980) 1291	153
See 75	P.A. Seeger et W.M. Howard; Nucl. Phys. A238 (1975) 491	123,185
See 76	P.A. Seeger et W.M. Howard; ADNDT 17 (1976) 428	123,129,130, 134,154,155, 161,162,167, 170,172,173, 175,176
Sep 67	A. Septier; Focusing of Charged Particles, Acad. Press N.Y. et Londres 1967, vol. II (p. 175, 213, 214)	23
She 76	R.K. Sheline; Cargèse 1976, p.351	151
Smi 75	L.G. Smith et A.H. Wapstra; Phys. Rev. C11 (1975) 1392	105
Ste 65	P.H. Stelson et L. Grodzins; NDT A1 (1965) 21	157
Str 75	V.M. Strutinsky; Nucl. Phys. A254 (1975) 197	123,172,175
Sue 51	H.E. Suess et J.H.D. Jensen; Arkiv Fysik 3 (1951) 577	173
Swa 31	W.F.G. Swann; Journ. Franklin Inst. 212 (1931) 439	23
Tak 76	K. Takahashi et al; Rapport IKDA 76/26. Darmstadt 1976	123
Thi 71	C. Thibault; Thèse, Orsay, juin 1971	4,9
Thi 75	C. Thibault et al.; Phys. Rev. C12 (1975) 644	2,3,43,53, 54,121,149, 159

Thi 81	C. Thibault et al.; Phys. Rev. C23 (1981) 2720 (Rb)	86,159
Thi 81a	C. Thibault et al.; Nucl. Phys. A367 (1981) 1 (Cs)	100,155,158, 159
Ton 79a	F. Tondeur; Comm. privée, octobre 1979	125,129,130, 131,135
Ton 80	F. Tondeur; East Lansing 1979, p. 355	125
Ton 81	F. Tondeur; Nucl. Phys. A359 (1981) 278	149,163
Tou 77	F. Touchard; Thèse 3 <sup>e</sup> cycle, Paris 7, avril 1977	37,143
Tou 78	F. Touchard et al.; Nucl. Instr. and Meth. 155 (1978) 449	37
Uno 81	M. Uno et M. Yamada; Progr. Theor. Phys. 65 (1981)	123,128
Uno 81a	M. Uno et al.; soumis à Bull. of Sc. and Eng., Waseda Univ	123,128,132
Vas 79	L. Vasharosh et al.; Izv. Akad. Nauk SSSR 43 (1979) 45	109,112
Vau 72	D. Vautherin et D.M. Brink; Phys. Lett. C5 (1972) 626	127
Vau 73	D. Vautherin; Phys. Rev. C7 (1973) 6	125,127
Wap 77	A.H. Wapstra et K. Bos; ADNDT 19 (1977) 177 } et ADNDT 20 (1977) 1 }	2,76,77,81, 84,94,95,96, 106,....
Wap 80	A.H. Wapstra; Nashville 1979, p. 209	81,113
Wap 81	A.H. Wapstra; Comm. privée	99,101,102, 175,177
Wes 75	L. Westgaard et al.; Z. Physik A275 (1975) 127	112
Wes 68	J.R. Westlake; A Handbook of Numerical Matrix Inversion and Solution of Linear Equations. (réed. Krieger, N.Y., 1975)	85
Whi 54	F.A. White et T.L. Collins; Applied Spectroscopy 8 (1954) 17	35
Woh 79	H.D. Wohlfahrt et al.; Hirscheegg 1979, p. 1	145
Woh 78	F.K. Wohn et W.L. Talbert; Phys. Rev. C18 (1978) 2328	107,108,110, 111,114,115
Wol 77	H. Wollnik et al.; Nucl. Phys. A291 (1977) 355	145,148,159
Wün 74	K.D. Wünsch et al.; Phys. Rev. C10 (1974) 2523	114
Wün 78	K.D. Wünsch et al.; Z. Physik A288 (1978) 105	106,108,110, 114
Zai 81	C.S. Zaidins; Comm. privée, programme ZIDFIT d'ajustement pondéré par une fonction analytique	150
Zel 65	N. Zeldes et al.; Nucl. Phys. 63 (1965) 1	165
Zel 67	N. Zeldes et al.; Mat Fys Skr Dan Vid Selsk 3 (1967)n°5	165
Zel 67a	N. Zeldes; Lysekil 1966, p. 361	140,149

Cargèse	1976	3rd Int. Conf. on Nuclei far from Stability; Cargèse, mai 1976, CERN 76-13, Genève (1976)
East Lansing	1979	Atomic Masses and Fundamental Constants 6, AMCO-6; East Lansing, septembre 1979, J.A. Nolen Jr et W. Benenson (eds) Plenum Press, N.Y. et Londres (1980)
Grenoble	1979	Workshop on the Nuclear Spectroscopy of Fission Products; ILL Grenoble, mai 1979, ed. Till von Egidy, Inst. Phys. Conf. Ser. n° 51 (1980)
Helsingør	1981	4th Int. Conf. on Nuclei far from Stability; Helsingør, juin 1981, CERN 81-09, Genève (1981)
Leysin	1970	Int. Conf. on the Prop. of Nuclei far from the Region of Beta-Stability; Leysin, septembre 1970, CERN 70-30, Genève 1970
Lyon	1981	Journées d'Etudes de Spectroscopie Nucléaire, IN2P3; Lyon, mai 1981
Lysekil	1966	Nuclei far off the Stability Line, Proc. of the Lysekil Symp. 1966 ; Ark. für Fysik 36 (1966)
Nashville	1979	Proc. Int. Symp. on Future Directions in Studies of Nuclei far from Stability; Nashville, septem- bre 1979 (North-Holland, Amsterdam, 1980)
Rochester	1973	Proc. 3rd IAEA Symp. on the Physics and Chemistry of Fission; Rochester, 1973 (IAEA, Vienne 1974)
Vienne	1963	Proc. 2nd Int. Conf. on Nuclidic Masses; Vienne, juillet 1963 (Springer-Verlag, Vienne et NY, 1964)
Zinal	1980	10th EMIS Conference; Zinal, septembre 1980, Nucl. Instr. and Meth. 186 (1981)